



---

TESIS SF 092006

**KESTABILAN KOMPOSIT KERAMIK SILIKA-MAGNESIA-BORIA  
TERHADAP SIKLUS TERMAL SEBAGAI *FUEL CELL SEALING*  
*MATERIAL***

Musyarofah  
NRP 1113201006

Dosen Pembimbing  
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

PROGRAM MAGISTER  
BIDANG KEAHLIAN MATERIAL  
JURUSAN FISIKA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2015



---

TESIS SF 092006

**THERMAL CYCLE STABILITY OF SILICA-MAGNESIA-BORIA  
CERAMIC COMPOSITE FOR FUEL CELL SEALING MATERIAL**

Musyarofah  
NRP 1113201006

Supervisor  
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

MAGISTER PROGRAM  
MATERIAL PHYSICS  
DEPARTMENT OF PHYSICS  
FACULTY OF MATHEMATICS AND NATURAL SCIENCES  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2015

Tesis ini disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar  
Magister Sains (M.Si)  
di

Institut Teknologi Sepuluh Nopember

oleh:


Musyarafah  
NRP. 1113201006

Tanggal Ujian : 29 Mei 2015  
Periode Wisuda : September 2015

Disetujui Oleh :

1. Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.  
NIP. 19660224 199002 1 001

(Pembimbing)

  
(.....)

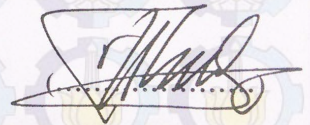
2. Prof. Dr. Suasmoro, DEA.  
NIP. 19550210 198010 1 001

(Penguji)

  
(.....)

3. Dr.rer.nat. Triwikantoro  
NIP. 19660114 199002 1 001

(Penguji)

  
(.....)

Direktur Program Pascasarjana



Prof. Dr. Ir. Adi Soeprijanto, M.T.  
NIP. 19640405 199002 1 001



# KESTABILAN KOMPOSIT KERAMIK SILIKA-MAGNESIA-BORIA TERHADAP SIKLUS TERMAL SEBAGAI *FUEL CELL* SEALING MATERIAL

Nama : Musyarofah  
NRP : 1113201006  
Pembimbing : Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

## ABSTRAK

Persyaratan dasar sebuah sealing material adalah dapat menutup rapat (menyegel) komponen cell dan stabil selama operasi cell. Dalam penelitian ini disintesis sealing material, yaitu komposit keramik silika-magnesia-boria dengan bahan dasar pasir silika dari Tanah Laut, Kalimantan Selatan, yang telah diekstraksi dengan separasi magnetik dan perendaman HCl sehingga memiliki kemurnian tinggi. Komposit dengan komposisi  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{MgO}$ , dan  $\text{B}_2\text{O}_3$  70:10:20 dalam persen berat disintesis dengan metode solid state reaction. Campuran serbuk dikompaksi dan disinter pada temperatur  $1150^\circ\text{C}$  dengan waktu penahanan 4 jam. Hasil pengujian menunjukkan komposit ini memiliki karakteristik sesuai dengan persyaratan sealing material, yaitu porositas 0,62 %, kekerasan 2,8 GPa, KET  $10,3 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ , dan resistivitas listrik  $2,5 \times 10^5 \text{ } \Omega \text{ cm}$ . Perlakuan siklus termal pada temperatur  $800^\circ\text{C}$  selama 1 jam per siklus diberikan pada komposit untuk mengetahui kestabilannya. Hingga siklus kelima belas, komposit menunjukkan kestabilannya pada karakteristik komposisi fasa, porositas, kekerasan, koefisien ekspansi termal, resistivitas listrik, dan struktur mikrofafi.

**Kata kunci:** komposit sistem  $\text{SiO}_2\text{-MgO-B}_2\text{O}_3$ , material penyegel *fuel cell*, kestabilan sifat fisis, siklus termal.



# THERMAL CYCLE STABILITY OF SILICA-MAGNESIA-BORIA CERAMIC COMPOSITE FOR FUEL CELL SEALING MATERIAL

Name : Musyarofah  
Student Identity : 1113201006  
Advisor : Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

## ABSTRACT

There are two basic needs for a sealing material, it needs to seal the adjacent cell components and be stable over long-term operation. This work aimed to study stability of sealing material based on silica-magnesia-boria when applied with thermal cycle. Silica used, is based on purified natural silica sand from Tanah Laut by magnetic separation and immersion with HCl methods. The sealing material was prepared by mixing the natural-sand-based silica ( $\text{SiO}_2$ ) powder with magnesia ( $\text{MgO}$ ) and Boria ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ) with composition of 70:10:20 by weight followed by uniaxial pressing and finally sintering at  $1150^\circ\text{C}$  with 4 hours to produce a ceramic composite. The results show that the ceramic exhibited 0.62 % apparent porosity,  $2.5 \times 10^5 \Omega \text{ cm}$  electrical resistivity, 2.8 GPa Vickers microhardness, and  $10.3 \times 10^{-6} ^\circ\text{C}^{-1}$  thermal expansion coefficient of which are relatively appropriate for sealing function in fuel cell. Thermal cycle tests were performed on the composite to examine the stability. Till fifteen cycles, the composite show the stability on its phase composition, apparent porosity, hardness, thermal expansion coefficient, electrical resistivity, and microstructure.

**Keywords:** sealing material,  $\text{SiO}_2$ - $\text{MgO}$ - $\text{B}_2\text{O}_3$ , stability, thermal cycle.



## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kehadiran Allah SWT, karena atas rahmat dan hidayah-Nya tesis yang berjudul "*Kestabilan Komposit Keramik Silika-Magnesia-Boria terhadap Siklus Termal sebagai Fuel Cell Sealing Material*" ini dapat diselesaikan dengan baik.

Penyelesaian tesis ini tidak terlepas dari peran berbagai pihak, yang dengan caranya masing-masing. Untuk itu, melalui kesempatan ini secara tulus penulis menyampaikan ucapan terima kasih kepada: *Pertama*, Bapak Prof. Suminar Pratapa, Ph.D. selaku dosen pembimbing yang senantiasa memberikan bimbingan, arahan dan semangat kepada penulis, serta Bapak Prof. Suasmo dan Bapak Dr. rer. nat. Triwikantoro selaku penguji yang telah banyak memberikan koreksi. *Kedua*, Ibu dan Bapak tercinta, Adek Ayub dan Ali tersayang, Lek Mus, serta keluarga besar di Rembang yang telah memotivasi dan mendoakan penulis dalam usaha penyelesaian studi serta selalu menantikan keberhasilan penulis dengan sabar. *Ketiga*, Seluruh Staf Pengajar serta Karyawan Laboratorium Fisika Material Jurusan Fisika ITS. *Keempat*, Tim penelitian, Ibu Upik Nurbaiti, Egidius Dewa, Nur Aini Fauziyah, Indra Wulan Sari R., Fikriyatul M., dll yang turut membantu dalam penelitian dan diskusi di laboratorium. *Kelima*, sahabat-sahabatku tercinta Rizqa, Meta, Aini, Umi, dan Zuffa serta rekan kuliah yang terus memberikan semangat dan dukungan.

Akhirnya dengan penuh kesadaran atas keterbatasan ilmu pengetahuan dan kemampuan yang dimiliki, maka penulis berharap semoga tesis ini, dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan serta memberikan masukan bagi pembaca untuk perkembangan ilmu lebih lanjut.

Surabaya, April 2015

Musyarofah



## DAFTAR ISI

	Halaman
HALAMAN JUDUL .....	i
LEMBAR PENGESAHAN.....	iii
ABSTRAK .....	iv
KATA PENGANTAR .....	vi
DAFTAR ISI .....	vii
DAFTAR GAMBAR .....	x
DAFTAR TABEL .....	xi
DAFTAR LAMPIRAN .....	xii
<b>BAB 1 PENDAHULUAN</b>	
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Perumusan Masalah .....	2
1.3 Tujuan Penelitian .....	3
1.4 Batasan Masalah .....	3
1.5 Manfaat Penelitian .....	3
<b>BAB 2 KAJIAN PUSTAKA</b>	
2.1 Pasir Silika, SiO <sub>2</sub> .....	5
2.2 Diagram Fasa SiO <sub>2</sub> -MgO .....	5
2.3 Diagram Fasa MgO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	6
2.4 Bahan Aditif B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	7
2.5 <i>Seal Fuel Cell</i> .....	8
<b>BAB 3 METODE PENELITIAN</b>	
3.1 Alat dan Bahan.....	11
3.1.1 Alat .....	11
3.1.2 Bahan .....	11
3.2 Prosedur Kerja .....	11
3.2.1 Ekstraksi SiO <sub>2</sub> .....	11
3.2.2 Sintesis Komposit Keramik Berbasis Pasir Silika-Magnesia- Boria.....	12



3.2.3	Perlakuan Siklus Termal .....	12
3.3	Karakterisasi Bahan Uji .....	13
3.3.1	Uji XRF .....	13
3.3.2	Uji XRD .....	13
3.3.3	Uji Densitas dan Porositas .....	14
3.3.4	Uji Kekerasan .....	14
3.3.5	Uji Resistivitas Listrik .....	15
3.3.6	Uji TMA.....	15
3.3.7	Uji Mikrografi .....	15
3.4	Diagram Alir Penelitian .....	16
3.4.1	Ekstraksi SiO <sub>2</sub> .....	16
3.4.2	Sintesis Komposit Keramik Silika-Magnesia-Boria.....	18
3.4.3	Perlakuan Siklus Termal Pada Komposit Silika-Magnesia-Boria	19
<b>BAB 4 HASIL DAN PEMBAHASAN</b>		
4.1	Ekstraksi Silika .....	21
4.2	Karakteristik Komposit SMB .....	23
4.2.1	Komposisi Fasa Komposit SMB .....	23
4.2.2	Densitas dan Porositas Komposit SMB .....	26
4.2.3	Kekerasan Komposit SMB.....	26
4.2.4	Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB .....	27
4.2.5	Resistivitas Listrik Komposit SMB .....	28
4.2.6	Mikrografi Komposit SMB .....	28
4.3	Karakteristik Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal.....	30
4.3.1.	Komposisi Fasa Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal .....	30
4.3.2.	Densitas dan Porositas Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal .....	32
4.3.3.	Kekerasan Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal	33
4.3.4.	Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal.....	33
4.3.5.	Resistivitas Listrik Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal .....	34



4.3.6. Mikrografi Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal	35
4.4 Diskusi.....	37
4.4.1. Ekstraksi Silika.....	37
4.4.2. Seleksi Komposit SMB sebagai <i>Sealing Material</i> .....	37
4.4.3. Kestabilan Komposit SMB4j terhadap Siklus Termal.....	41
BAB 5 PENUTUP	
5.1 Kesimpulan.....	45
5.2 Saran.....	46
DAFTAR PUSTAKA .....	47
LAMPIRAN	
LAMPIRAN A .....	51
LAMPIRAN B.....	55
LAMPIRAN C.....	59
LAMPIRAN D .....	65
LAMPIRAN E.....	66
LAMPIRAN F.....	69
LAMPIRAN G .....	76
LAMPIRAN H .....	77
LAMPIRAN I.....	78
BIOGRAFI PENULIS .....	79



## DAFTAR GAMBAR

Gambar	Halaman
2.1 Diagram fasa $\text{SiO}_2\text{-MgO}$ .....	6
2.2 Diagram fasa $\text{MgO-B}_2\text{O}_3$ .....	7
2.3 Penambahan bahan aditif pada suatu material akan mereduksi porositas .....	8
2.4 Skema posisi <i>seal</i> pada SOFC planar.....	9
3.1 Perlakuan siklus termal .....	13
3.2 Diagram alir proses pemurnian silika .....	17
3.3 Diagram alir pembuatan komposit silika-magnesia-boria .....	18
3.4 Diagram alir siklus termal pada komposit silika-magnesia-boria .....	19
4.1 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi $\text{Cu-K}\alpha$ ) pasir Tanah Laut (TL), pasir Tambang Ulang (TU), pasir Sungai Riam (SR), dan pasir Sungai Asem- asem (SA).....	21
4.2 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi $\text{Cu-K}\alpha$ ) pasir Tanah Laut sebelum pemurnian dan setelah separasi magnetik dan perendaman $\text{HCl}$ .....	23
4.3 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi $\text{Cu-K}\alpha$ ) komposit SMB1j, SMB4j, dan SMB6j .....	24
4.4 Mikrografi komposit (a) SMB1j, (b) SMB4j, dan (c) SMB6j dengan perbesaran 2000 kali .....	29
4.5 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi $\text{Cu-K}\alpha$ ) komposit SMB4j pada beberapa siklus termal .....	31
4.6 Mikrografi komposit SMB4j pada siklus (a) ke-0 (a) ke-3 (c) ke-6 (d) ke-9 (e) ke-12 (f) ke-15 dengan perbesaran 20.000 kali.....	36



## DAFTAR TABEL

Tabel

Halaman

2.1	Persyaratan <i>Fuel Cell Sealing Material</i> (Mahapatra dan Lu, 2010).....	9
4.1	Komposisi Unsur dalam Sampel Sebelum dan Setelah Ekstraksi .....	22
4.2	Komposisi Fasa Komposit SMB.....	25
4.3	Densitas <i>Bulk</i> dan Porositas Komposit SMB .....	26
4.4	Kekerasan Komposit SMB .....	27
4.5	Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB.....	27
4.6	Resistivitas Listrik Komposit SMB pada Temperatur 800 °C .....	28
4.7	Komposisi Fasa Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal .....	32
4.8	Densitas dan Porositas Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal	32
4.9	Kekerasan Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal.....	33
4.10	Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus ....	34
4.11	Resistivitas Listrik Komposit SMB4j pada Temperatur 800°C .....	34
4.13	Rekap Karakteristik Komposit SMB .....	40

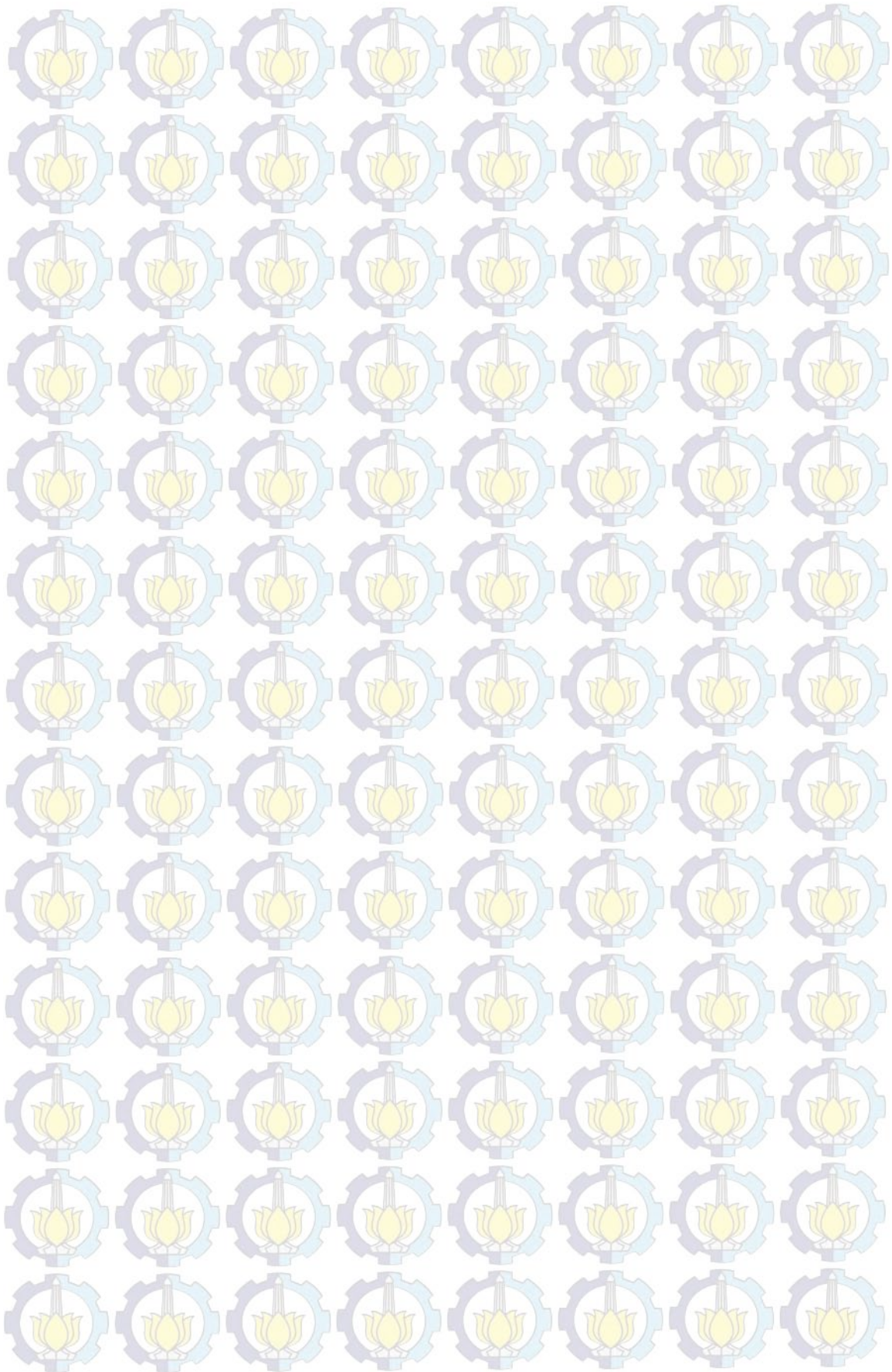


## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran

Halaman

A	Data ICSD dan COD .....	53
B	Plot Hasil Penghalusan ( <i>Rietveld Refinement</i> ) dengan Perangkat Lunak <i>Rietica</i> .....	57
C	Keluaran Penghalusan <i>Rietveld</i> dengan menggunakan <i>Rietica</i> .....	61
D	Penghitungan Nilai KET dengan Pendekatan <i>Rule of Mixture</i> .....	65
E	Analisis Penghitungan Nilai Resistivitas Listrik dari Grafik <i>Semicircle</i> .....	66
F	Analisis Penghitungan Nilai $T_g$ dari Data DTA.....	69
G	Rekap Karakteristik Komposit SMB terhadap Waktu Penahanan Sinter .....	75
H	Rekap Karakteristik Komposit SMB4j terhadap Perlakuan Siklus Termal .....	76
I	Deviasi Kestabilan Karakteristik Komposit SMB4j Terhadap Perlakuan Siklus Termal .....	





# BAB 1

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Teknologi energi yang banyak dikembangkan saat ini adalah yang sumber energi yang memiliki efisiensi tinggi, murah dan ramah lingkungan. *Fuel cell* merupakan sistem yang mengubah energi kimia dari gas bahan bakar (*fuel gas*) menjadi listrik dengan efisiensi yang tinggi. Namun yang menjadi tantangan dalam perkembangan teknologi *fuel cell* adalah pada biaya dan pengembangan material komponen *cell* yang memiliki *life time* panjang (Choudhury dkk, 2013).

Salah satu komponen penting dalam sistem *fuel cell* adalah *seal*, karena berfungsi untuk mencegah kebocoran gas pada sistem. Kualitas *seal* harus baik karena kebocoran sedikit saja akan mempengaruhi potensial pada *cell* sehingga mengurangi performa kerja (Fergus, 2005). Dua syarat utama *seal* adalah dapat menyegel (*sealing*) komponen-komponen *cell* yang lain dan stabil terhadap siklus termal dalam jangka waktu yang panjang selama *cell* beroperasi (Mahapatra dan Lu, 2010a). Kestabilan berkaitan dengan tidak adanya perubahan sifat-sifat fisik maupun kimia pada *seal* akibat siklus termal yang berulang (Mahapatra dan Lu, 2010b).

Di sisi lain, Indonesia memiliki kekayaan sumber daya alam yang melimpah, salah satunya adalah bahan baku pasir silika. Endapan pasir silika banyak tersebar di beberapa tempat di Indonesia dengan kadar silikon oksida antara 55,30-99,87 % (Suhala dkk, 1997). Proses pemurnian akan memberi nilai tambah pada pasir ini, selain itu dapat mengurangi biaya material (Zuhailawati dkk, 2007). Seperti yang telah dilakukan Aristia (2013), yang berhasil mengekstraksi silika ( $\text{SiO}_2$ ) dengan kemurnian tinggi dari pasir alam.

Sementara itu, magnesita ( $\text{MgO}$ ) dilaporkan memiliki karakteristik nilai koefisien termal sekitar  $13,5 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  dengan densitasnya sebesar  $3,78 \text{ g/cm}^3$  (Mahapatra dan Lu, 2010a; Heimann, 2010).  $\text{MgO}$  juga sesuai digunakan sebagai *reinforcement* dalam komposit keramik berbasis silika. Komposit silika-magnesita diketahui memiliki koefisien ekspansi termal yang relatif rendah sehingga baik



untuk aplikasi pada suhu tinggi serta mempunyai stabilitas kimia yang baik (Kazanovic dkk, 2005).

Merujuk penelitian Dewa (2014) diketahui bahwa komposit keramik berbasis  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$  dan  $\text{B}_2\text{O}_3$  sebagai *sintering agent* memiliki karakteristik porositas rendah dan nilai koefisien ekspansi termal (KET) dalam kisaran  $9,5\text{-}12,0 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ . Material ini memenuhi sebagian persyaratan sebagai *sealing material* pada sistem *fuel cell*. Komponen  $\text{SiO}_2$  diperoleh dari hasil pengolahan pasir silika dari daerah Bancar, Tuban, Jawa Timur.

Uji perlakuan siklus termal pada material *fuel cell seal* sangat penting dilakukan untuk mengetahui performa (kestabilan) *seal*, mengingat sistem *fuel cell* bekerja pada operasi siklik. Oleh sebab itu, perlu dilakukan kajian kestabilan sifat-sifat fisik yang menonjol dari sistem komposit  $\text{SiO}_2\text{-MgO-B}_2\text{O}_3$  terhadap pengulangan pemberian pemanasan (siklus termal) pada temperatur operasi *fuel cell* dalam kaitannya dengan aplikasi sebagai *seal*. Kembali pada tantangan perkembangan teknologi *fuel cell* saat ini, yaitu terkait biaya dan kebutuhan akan material komponen yang stabil, maka penelitian ini fokus pada pembuatan *sealing material* berbasis pasir silika dari Tanah Laut, Kalimantan Selatan yang dikompositkan dengan magnesita serta boria sebagai *sintering agent*. Penggunaan bahan dasar *seal* yang berbasis pasir alam diharapkan dapat mengurangi biaya dalam pembuatan *seal*. Komposit yang dihasilkan diuji kestabilan sifat fisik, mekanik, termal, dan listrik selama perlakuan siklus termal.

## 1.2 Perumusan Masalah

Perumusan masalah dalam penelitian ini adalah:

1. Bagaimana mengoptimalkan hasil ekstraksi silika dengan bahan dasar pasir alam.
2. Bagaimana karakteristik awal sifat fisik, mekanik, listrik, dan termal komposit silika-magnesita-boria.
3. Bagaimana stabilitas sifat fisik, mekanik, listrik, dan termal komposit silika-magnesita-boria terhadap perlakuan siklus termal.



### 1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan pada perumusan masalah di atas, maka tujuan dari penelitian ini adalah mengetahui kestabilan sifat fisik, mekanik, listrik, dan termal komposit keramik silika-magnesia-boria terhadap perlakuan siklus termal.

### 1.4 Batasan Masalah

Batasan masalah dalam penelitian ini adalah:

1. Bahan dasar yang digunakan berbasis pasir silika alam dari Kalimantan Selatan.
2. Sifat-sifat yang dikaji adalah densitas, porositas, komposisi fasa, kekerasan, resistivitas listrik, *transition glass temperature*, dan koefisien ekspansi termal dari komposit keramik berbasis silika-magnesia-boria
3. Perlakuan siklus termal diberikan hingga 15 siklus pada temperatur operasi *fuel cell* yaitu 800°C

### 1.5 Manfaat Penelitian

Hasil dari penelitian ini diharapkan dapat:

1. Memberikan pemanfaatan dan peningkatan nilai tambah bahan alam berupa pasir silika yang diekstraksi menjadi silika dengan kemurnian tinggi dan menjadi bahan dasar *sealing material*.
2. Memberikan informasi apakah sifat fisik, mekanik, listrik, dan termal komposit keramik silika-magnesia-boria stabil terhadap perlakuan siklus termal sehingga dapat diaplikasikan sebagai *sealing material*.



Halaman ini sengaja dikosongkan



## BAB 2

### KAJIAN PUSTAKA

#### 1.1 Pasir Silika, $\text{SiO}_2$

Pasir silika merupakan hasil pelapukan batuan yang mengandung mineral utama, seperti silikon oksida. Pasir silika pada umumnya mengandung senyawa pengotor (*impurities*) seperti oksida besi, oksida kalsium, oksida alkali, oksida magnesium, lempung dan zat organik hasil pelapukan sisa-sisa hewan dan tumbuhan (Chakraborty dan Maiti, 2000).

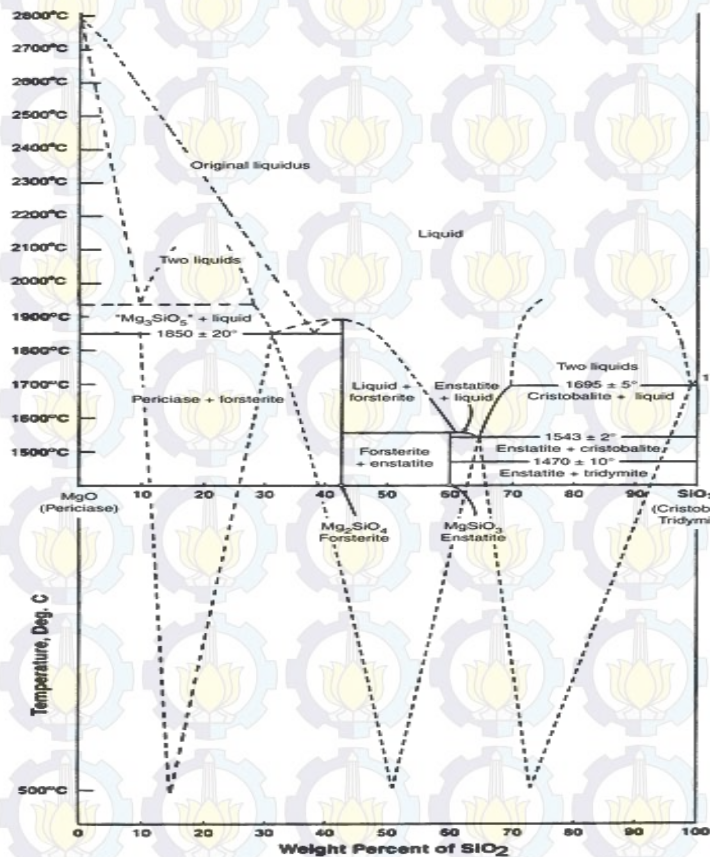
Szostak (1998) menjelaskan bahwa silika memiliki beberapa bentuk kristal yang berbeda selain bentuk amorf. Tiga bentuk fasa kristal polimorfi silika yang paling dominan yaitu kuarsa, tridimit, dan kristobalit. Kuarsa adalah mineral utama dari silika yang mempunyai struktur atom tetrahedral, dimana satu atom silikon dikelilingi oleh empat atom oksigen.

Pada suhu kamar struktur atom tetrahedral pada silika tersusun dalam suatu susunan heksagonal, namun pada suhu  $875^\circ\text{C}$  kestabilan struktur atom tetrahedral berubah. Fasa pada suhu rendah dari silika adalah kuarsa, fasa pada suhu menengah adalah tridimit dan fasa pada suhu tinggi adalah kristobalit. Kristobalit dan tridimit merupakan fasa metastabil pada suhu ruang sedangkan kuarsa pada suhu tinggi sebagai fasa metastabil.

#### 1.2 Diagram Fasa $\text{SiO}_2\text{-MgO}$

Pengaruh sinter dan komposisi pada suatu gabungan dua material atau lebih seperti komposit keramik  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$  dapat dianalisis menggunakan diagram fasa. Gambar 2.3 menunjukkan diagram fasa silika dan komposit keramik  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$ . Diagram fasa pada Gambar 2.3 menjelaskan diagram fasa komposit keramik  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$  dapat menjelaskan bahwa pada rentang suhu  $1000^\circ\text{C}$  sampai  $1500^\circ\text{C}$  selain kuarsa dan periklas dapat terbentuk fasa baru yaitu forsterit ( $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ) dan enstatit ( $\text{MgSiO}_3$ ).





**Gambar 2.1** Diagram fasa  $\text{SiO}_2$ - $\text{MgO}$  (Rietmeijer, 2002)

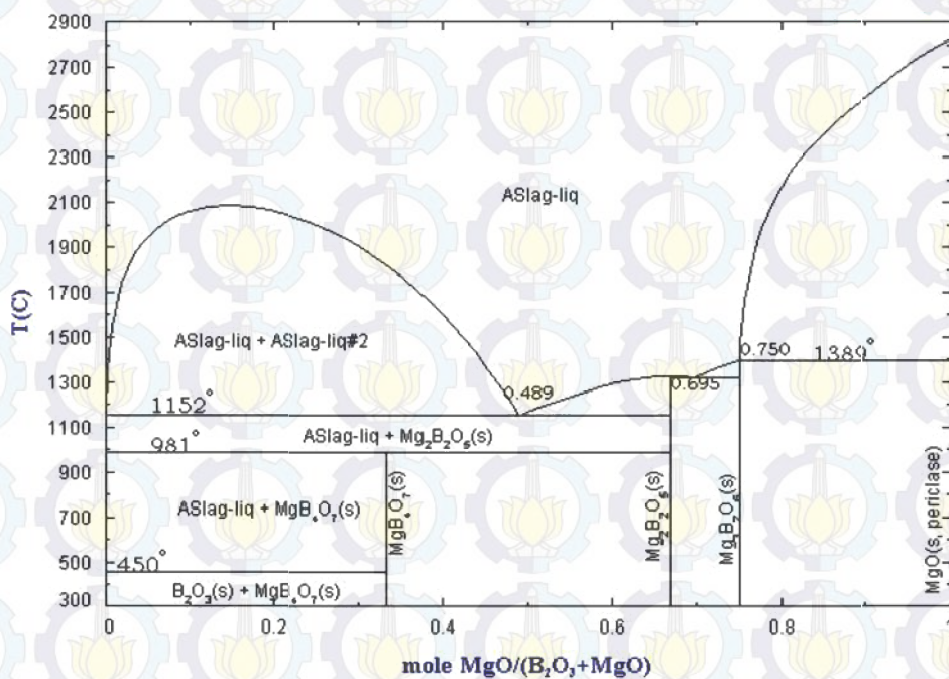
Enstatit ( $\text{MgSiO}_3$ ) merupakan fasa kristalin polimorfi. Ada tiga jenis polimorfinya, yaitu enstatit (orthoenstatit) dengan struktur orthorombik  $a = 18,2 \text{ \AA}$ ; protoenstatit dengan struktur orthorombik  $a = 9,1 \text{ \AA}$ ; dan klintoenstatit dengan struktur monoklinik primitif pada temperatur rendah dan *C-centered* pada temperatur tinggi (Smyth, 1974).

Material keramik yang berbasis *magnesium metasilicate* ( $\text{MgSiO}_3$ ) ideal untuk aplikasi *high frequency low loss high voltage insulator* dan resistor karena memiliki sifat mekanik yang bagus dan rendah *loss electrical* (Beall, 1993).

### 1.3 Diagram Fasa $\text{MgO}$ - $\text{B}_2\text{O}_3$

Ada banyak jenis *metal borate*, baik yang terdapat di alam maupun yang harus disintesis di laboratorium. Salah satu diantaranya yaitu

magnesium borat. Davis dan Knight (1945) telah mempelajari sistem biner  $\text{MgO-B}_2\text{O}_3$  dan menemukan tiga *binary compound* dari magnesia dan boria, yaitu  $3\text{MgO} \cdot \text{B}_2\text{O}_3$  ( $\text{Mg}_3\text{B}_2\text{O}_6$ ),  $2\text{MgO} \cdot \text{B}_2\text{O}_3$  ( $\text{Mg}_2\text{B}_2\text{O}_5$ ), dan  $\text{MgO} \cdot \text{B}_2\text{O}_3$  ( $\text{MgB}_2\text{O}_4$ ). Diagramnya ditunjukkan pada Gambar 2.2. *Magnesium borate* ini memiliki potensi aplikasi yang luas. Salah satu sifat unggulnya adalah karakteristiknya yang *high degree of thermal shock resistance* (Qasrawi dkk, 2005).

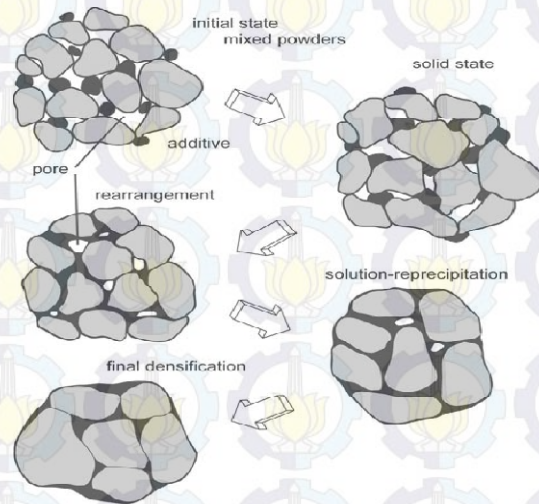


**Gambar 2.2** Diagram fasa  $\text{MgO-B}_2\text{O}_3$  (FACT oxide database, 2010)

#### 1.4 Bahan Aditif $\text{B}_2\text{O}_3$

Boria ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ) merupakan *a lower-temperature glass former* (Hao dkk, 2012) dikarenakan titik lelehnya yang rendah dibandingkan  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{MgO}$ , yaitu sekitar 480°C (Wang dkk, 2009). Sehingga hal ini menyebabkan  $\text{B}_2\text{O}_3$  banyak digunakan sebagai *sintering agent* untuk tujuan eliminasi pori-pori sehingga meningkatkan densitas suatu bahan (Yang dan Cheng, 1999). Gambar 2.4 menunjukkan bahwa penambahan bahan aditif pada suatu material akan mereduksi porositas.

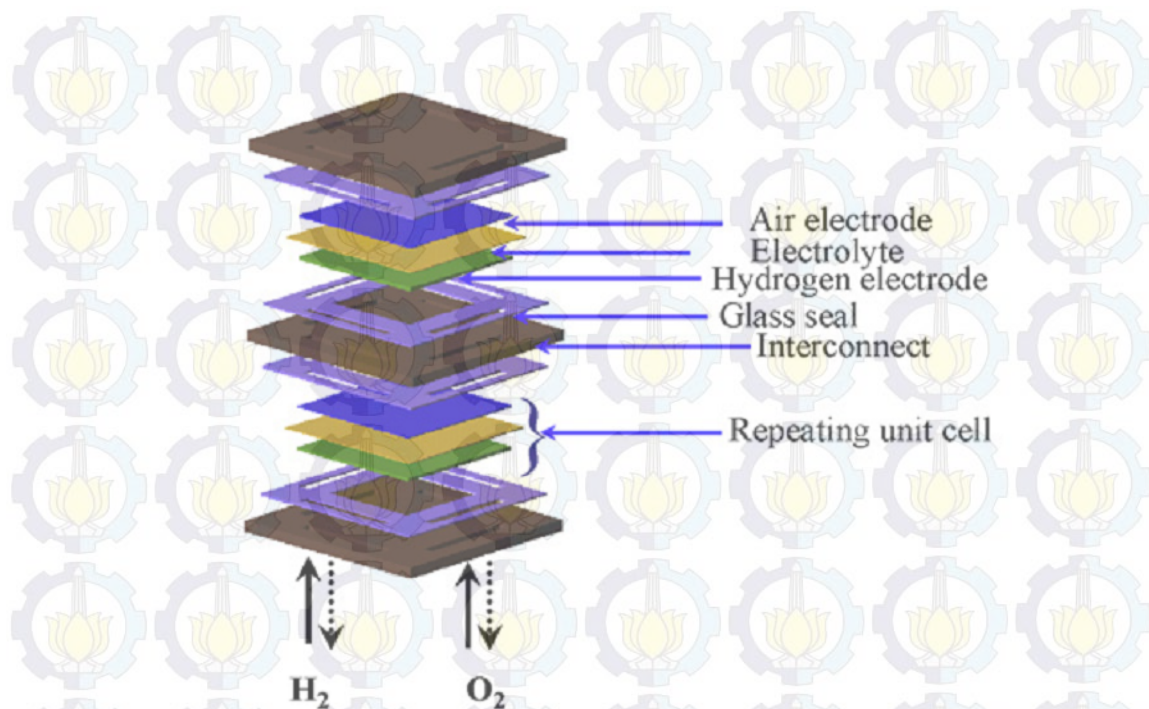




**Gambar 2.3.** Penambahan bahan aditif pada suatu material akan mereduksi porositas (German dkk, 2009)

### 1.5 Fuel cell seal

*Fuel cell* adalah peralatan *electrochemical* yang mengkonversi bahan bakar gas menjadi energi listrik. Beberapa jenis *fuel cell* antara lain *phosphoric acid fuel cell*, *proton exchange membrane fuel cell*, *molten carbonate fuel cell*, *solid oxide fuel cell*, dan *alkaline fuel cell* (Mahapatra dan Lu, 2010b). Diantara jenis-jenis *fuel cell* tersebut, *solid oxide fuel cell* (SOFC) lebih banyak diminati karena efisiensinya yang tinggi, bahan bakarnya fleksibel, dan biayanya relatif lebih rendah. Terdapat dua jenis desain yang dikembangkan pada jenis *fuel cell* ini, yaitu tubular dan planar. Desain planar banyak digunakan karena memiliki *specific power output* tinggi, resistivitas listrik rendah, *volumetric power density* tinggi, dan biaya fabrikasi rendah (Mahapatra dan Lu, 2010a). Pada SOFC planar, diperlukan *seal* diantara komponen-komponen (*electrode*, *electrolyte*, dan *interconnect*) seperti ditunjukkan pada Gambar 2.4. Hal ini bertujuan untuk mengikat komponen-komponen *cell*, mencegah tercampurnya gas di anoda dan katoda, serta sebagai isolator listrik untuk mencegah *shunting* (Mahapatra dan Lu, 2010a).



**Gambar 2.4.** Skema posisi *seal* pada SOFC planar (Mahapatra dan Lu, 2010a).

Secara umum, material *seal* pada sistem *fuel cell* harus memenuhi dua persyaratan, yaitu dapat menyegel (*sealing*) dan stabil terhadap siklus termal. Tabel 2.1 menunjukkan beberapa persyaratan *fuel cell sealing material* secara lebih rinci terkait sifat termal, kimia, mekanik, listrik kemampuan menyegel dan fleksibilitas pembuatan.

**Tabel 2.1** Persyaratan *Fuel Cell Sealing Material* (Mahapatra dan Lu, 2010a).

Sifat	Persyaratan
Termal	Memiliki koefisien ekspansi termal antara 9,5-12 ppm/°C.
	Secara termal stabil selama 5000 jam untuk aplikasi mobile, dan 50.000 jam untuk aplikasi stasioner pada temperatur operasi antara 650-900°C.
Kimia	Tahan terhadap penguapan dan perubahan komposisi pada oksidasi dan pengurangan atmosfer pada 650-900°C.
	Tidak bereaksi dengan komponen fuel cell yang lain.
Mekanik	Dapat menahan beban statis dan dinamis eksternal selama beroperasi.



	Tahan terhadap kegagalan siklus termal selama fuel cell mulai beroperasi (dinyalakan) dan dimatikan.
Listrik	Resistivitas listrik $\geq 10^4 \Omega$ pada temperatur operasi fuel cell
	Resistivitas listrik lebih besar daripada 500 $\Omega$ cm di antara cell dan stack pada kondisi operasi
Sealing ability	Sealing load < 35 kPa
	Tahan pada tekanan 14-35 kPa
	Total kebocoran fuel < 1%
Fleksibilitas fabrikasi	Desain yang fleksibel, biaya proses yang rendah dan ketahanan yang tinggi.

Jenis-jenis *seal* digunakan pada SOFC antara lain *compressive seal*, *compliant seal*, dan *rigid bonded seal*. Dibandingkan yang lain, jenis *seal* yang ketiga memiliki lebih banyak kelebihan, yaitu membentuk lapisan kedap udara pada *interface* dengan komponen *cell*, mudah dalam pembuatan, biaya lebih efisien, penggunaan fleksibel, sifat-sifatnya dapat didesain dengan memodifikasi komposisi material *seal* (Mahapatra dan Lu, 2010a). *Rigid bonded seal* merupakan *seal* yang berbasis *glass* atau *glass-ceramic*. *Glass seal* terdiri dari tiga komponen utama, yaitu *network former*, *network modifier*, dan *intermediate oxide*, serta komponen minor: *additive*. Kesulitan utama dalam pengembangan *glass seal* adalah pemilihan jenis dan komposisi *glass* (Raschadel dkk, 2012) sehingga diperoleh karakteristik yang diinginkan (seperti pada Tabel 2.1). Penelitian ini digunakan *seal* berbasis sistem  $\text{SiO}_2\text{-MgO-B}_2\text{O}_3$  dengan proses sintesis dan karakterisasi dijelaskan pada bab selanjutnya.



## BAB 3

### METODE PENELITIAN

#### 3.1. Alat dan Bahan

##### 3.1.1. Alat

Alat-alat yang digunakan dalam pembuatan sampel antara lain beker glass, spatula kaca, timbangan digital (*digital balance*), magnet permanen, *ball mill*, bola zirconia, ayakan 100 mesh, pengaduk magnet (*stirring magnetic*), kertas pH (*universal indicator*), mortar, alat *pressing*, krusibel, dan *furnace* tipe RHF 1400. Sedangkan peralatan yang digunakan untuk karakterisasi antara lain *X-Ray Fluorence* (XRF) *spectrometer* untuk mengetahui komposisi unsur-unsur dalam pasir alam, *X-Ray Diffractometer* (XRD) untuk mengidentifikasi fasa-fasa dalam sampel, *Digital Microhardness Tester* untuk uji kekerasan sampel, *Solartron Analytical SI 1260* digunakan untuk menganalisis sifat listrik sampel, *Thermomechanical Analyzer* (TMA) untuk mengukur nilai KET sampel, dan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) untuk mengetahui mikrostruktur sampel.

##### 3.1.2. Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain: pasir alam dari beberapa lokasi di Kalimantan Selatan (Tanah Laut, Tambang Ulang, Sungai Riam, dan Sungai Asem-asem), serbuk magnesium oksida (MgO), serbuk boron oksida (B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), *polivynil alcohol* (PVA), asam klorida (HCl) 2 M, *aquadest* dan alkohol.

#### 3.2. Prosedur Kerja

##### 3.2.1 Ekstraksi SiO<sub>2</sub>

Pemurnian silika diawali dengan pemilihan bahan dasar dari keempat pasir yang diambil dari beberapa lokasi di Kalimantan Selatan. Identifikasi kandungan fasa pasir-pasir alam ini menggunakan uji XRD. Pada bab selanjutnya (subbab 4.1) dijelaskan bahwa pasir Tanah Laut memiliki pola difraksi fasa tunggal kuarsa. Oleh karena itu ekstraksi SiO<sub>2</sub> selanjutnya menggunakan pasir tersebut. Pasir dicuci dengan aquades dan dikeringkan pada suhu  $\pm 80$  °C selama 12 jam.



Kemudian dilakukan ekstraksi menggunakan magnet permanen untuk mengurangi kadar unsur-unsur magnetik dalam pasir.

Pasir dihaluskan dengan metode *wet milling* yang menggunakan medium alkohol selama 1 jam. Setelah itu, pasir dikeringkan dan diayak (100 mesh) untuk memperoleh serbuk dengan ukuran yang seragam.

Guna meningkatkan kemurnian serbuk silika, dilakukan proses *stirring* dengan HCl 2M selama 30 menit dan perendaman selama 12 jam. Perbandingan silika dan HCL adalah 1 g : 30 ml. Setelah proses perendaman, endapan serbuk dinetralkan (hingga pH  $\pm 7$ ) dengan aquades kemudian dikeringkan. Maka, didapatkanlah serbuk silika yang selanjutnya diuji XRF dan XRD untuk mengetahui kandungan unsur dan fasanya.

### 3.2.2 Sintesis Komposit Keramik Silika-Magnesia-Boria

Bahan-bahan yang digunakan untuk membuat komposit antara lain serbuk silika ( $\text{SiO}_2$ ),  $\text{MgO}$ , dan  $\text{B}_2\text{O}_3$  dengan perbandingan 70:10:20 masing-masing dalam fraksi berat, serta ditambahkan PVA yang berperan sebagai pengikat (*binder*). Semua bahan dicampur dengan pengadukan menggunakan mortar selama 30 menit.

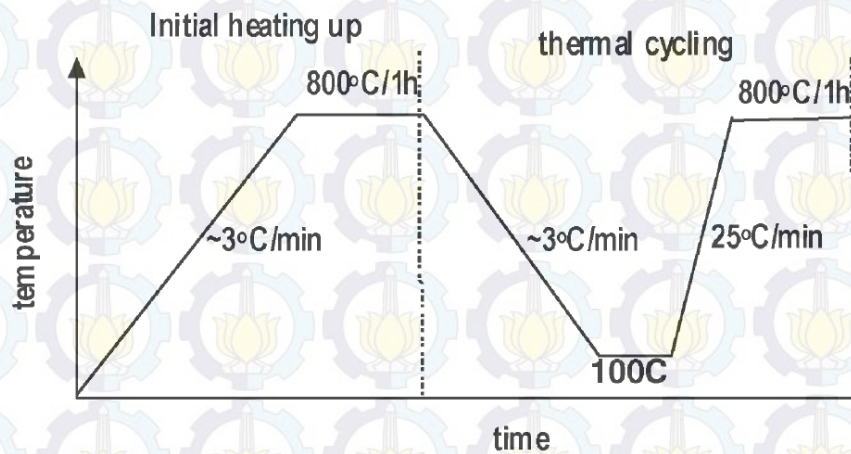
Campuran serbuk dimasukkan ke dalam cetakan silinder dengan diameter  $1,3 \pm 0,05$  cm dan ditekan dengan beban 4500 N untuk mendapatkan bentuk pelet. Kemudian dilakukan proses sinter dengan suhu  $1150^\circ\text{C}$  dan waktu penahanan 1, 4 dan 6 jam. Selanjutnya sampel ini diberi kode SMB1j untuk sampel yang disinter dengan waktu penahanan 1 jam, SMB4j untuk waktu penahanan 4 jam, dan SMB6j untuk waktu penahanan 6 jam.

### 3.2.3 Perlakuan Siklus Termal

Setelah sintesis komposit SMB1j, SMB4j, dan SMB6j kemudian dilakukan analisis sifat fisik, mekanik, listrik, dan termal. Pada subbab 4.2 diperoleh bahwa komposit SMB4j merupakan kandidat *sealing material* yang kemudian diberi perlakuan siklus termal pada suhu  $800^\circ\text{C}$  selama 1 jam. Perlakuan termal ini dilakukan sampai siklus kelima belas. Gambar 3.1 menunjukkan grafik perlakuan siklus termal yang diberikan pada komposit. Sampel yang telah diberi perlakuan



hingga pada siklus ketiga (SMB4j-3s), keenam (SMB4j-6s), kesembilan (SMB4j-9s), kedua belas (SMB4j-12s), dan kelima belas (SMB4j-15s) diuji sifat fisik, mekanik, termal, dan listrik guna mengetahui stabilitasnya terhadap siklus termal.



**Gambar 3.1** Perlakuan siklus termal (Chou dan Stevenson, 2002)

### 3.3 Karakterisasi Bahan Uji

#### 3.3.1 Uji XRF (*X-Ray Fluorence*)

Pengujian menggunakan *X-Ray Fluorence* (XRF) *spectrometer* dilakukan untuk mengetahui komposisi elemen pasir-pasir alam dari Kalimantan Selatan. Perangkat XRF yang digunakan berada di Universitas Negeri Sebelas Maret (UNS), Surakarta.

#### 3.3.2 Uji XRD (*X-Ray Diffractometer*)

Untuk mengidentifikasi fasa-fasa kristalin pada sampel dilakukan pengujian XRD Tipe *Philips X'Pert PRO* di LPPM ITS. Pengukuran ini akan dilakukan pada sudut  $15-65^\circ$  dan *step size*  $0,04^\circ$  dengan tegangan 40 kV dan arus 30 mA menggunakan target Cu ( $\lambda=1,54056 \text{ \AA}$ ).

Analisis kualitatif atau identifikasi fasa pada hasil uji XRD dilakukan dengan menggunakan program *Match!2* melalui pencocokan (*matching*) antara pola XRD terukur dengan model yang telah ada. Sekuensi  $2\theta$ -intensitas dan list hkl yang cocok antara pola XRD terukur dan model, mengindikasikan bahwa sampel yang didifraksi



tersebut mengkristal dengan struktur yang dimiliki model, demikian juga dengan fasanya. Sedangkan analisis kuantitatif untuk menginvestigasi struktur kristal dan kuantitas fasa (%berat ataupun %volume) dilakukan dengan menggunakan perangkat lunak *Rietica* yang berbasis pada penghalusan *Rietveld* (Pratapa, 2009).

### 3.3.3 Uji Densitas dan Porositas

Densitas adalah ukuran kepadatan dari suatu benda atau sering disebut kerapatan benda. Sedangkan porositas menyatakan persen fraksi volum dari rongga yang ada dalam sampel. Densitas dan porositas komposit diperoleh dengan metode Archimedes, mengikuti standard Australia AS1774.5 (Australian standard, 1989). Densitas yang dicari berupa *bulk density* dari sampel yang dapat dihitung dengan menggunakan persamaan berikut:

$$\rho = \frac{m_k}{m_s - m_t} \rho_{air} \quad (3.1)$$

dengan  $\rho$  menyatakan massa jenis sampel,  $m_k$  adalah massa sampel kering,  $m_t$  adalah massa sampel yang terendam di dalam air,  $m_s$  adalah massa sampel basah di udara, dan  $\rho_{air}$  adalah massa jenis air.

Porositas suatu sampel biasa disebut dengan *apparent porosity* dan dihitung melalui perumusan berikut ini:

$$P = \frac{m_s - m_k}{m_s - m_t} 100\% \quad (3.2)$$

### 3.3.4 Uji Kekerasan

Kekerasan merupakan ukuran ketahanan material terhadap deformasi. Nilai kekerasan berkaitan dengan kekuatan luluh material selama indentasi (penjejakan). Uji kekerasan yang dilakukan pada penelitian ini adalah uji kekerasan dengan metode *Vickers* menggunakan alat *Digital Microhardness Tester* Tipe fM-7 merk *Mituyo* di LPPM ITS Surabaya. Penjejak (*indentor*) yang digunakan berupa intan yang ujungnya berbentuk piramida. Nilai kekerasan hasil pengujian ini disebut HV atau VHN (*Vickers Hardness Number*), yang diartikan



sebagai besarnya beban yang diberikan dibagi luas penampang lekukan yang terjadi, dan dapat dinyatakan dalam persamaan 3.3 (Syarif dkk, 2011).

$$HV = 1,854 \frac{P}{d^2} \quad (3.3)$$

dengan  $HV$  adalah kekerasan *Vickers*,  $P$  menyatakan besarnya beban yang diberikan,  $d$  menyatakan rata-rata panjang diagonal jejak indenter. Besarnya beban yang diberikan dalam penelitian ini adalah 1 kgf.

### 3.3.5 Uji Resistivitas Listrik

Pengujian resistivitas listrik komposit dilakukan menggunakan alat *Solartron Analytical SI 1260* dengan metode *two point probes* dan dianalisis dengan perangkat lunak *SMaRT*.

### 3.3.6 Uji TMA

Nilai koefisien ekspansi termal dapat dianalisis secara teoritik menggunakan persamaan *Rule of Mixture* (Guo dkk, 2012). Persamaan *Rule of Mixture* (RoM) ditunjukkan sebagai berikut

$$\alpha_c = \alpha_r V_r + \alpha_m V_m \quad (3.4)$$

Dengan,  $V$  adalah fraksi volume dan indeks  $c$ ,  $r$ , dan  $m$ , berturut-turut menyatakan *composite*, *reinforcement*, dan *matrix*.

Selain itu, nilai KET dapat pula diperoleh dengan menggunakan data hasil uji TMA. Data yang diperoleh adalah grafik yang menyatakan hubungan antara suhu sampel (sumbu  $x$ ) dan pertambahan panjang (sumbu  $y$ ). Grafik tersebut dapat diambil tabulasi data dalam bentuk tabel dengan bantuan *software* yang relevan, dalam penelitian ini TMA dan *software* untuk analisis datanya adalah produk Mettler Toledo dan pengukurannya dengan seperangkat modul bertipe TMA/STDA840.

### 3.3.7 Uji Mikrofografi

Untuk memperoleh informasi struktur permukaan sampel sebelum dan setelah siklus termal dilakukan pengujian mikrofografi dengan menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) merk FEI tipe *Insect-S50* di LPPM ITS Surabaya.



### 3.4 Diagram Alir Penelitian

#### 3.4.1 Ekstraksi $\text{SiO}_2$

(a)



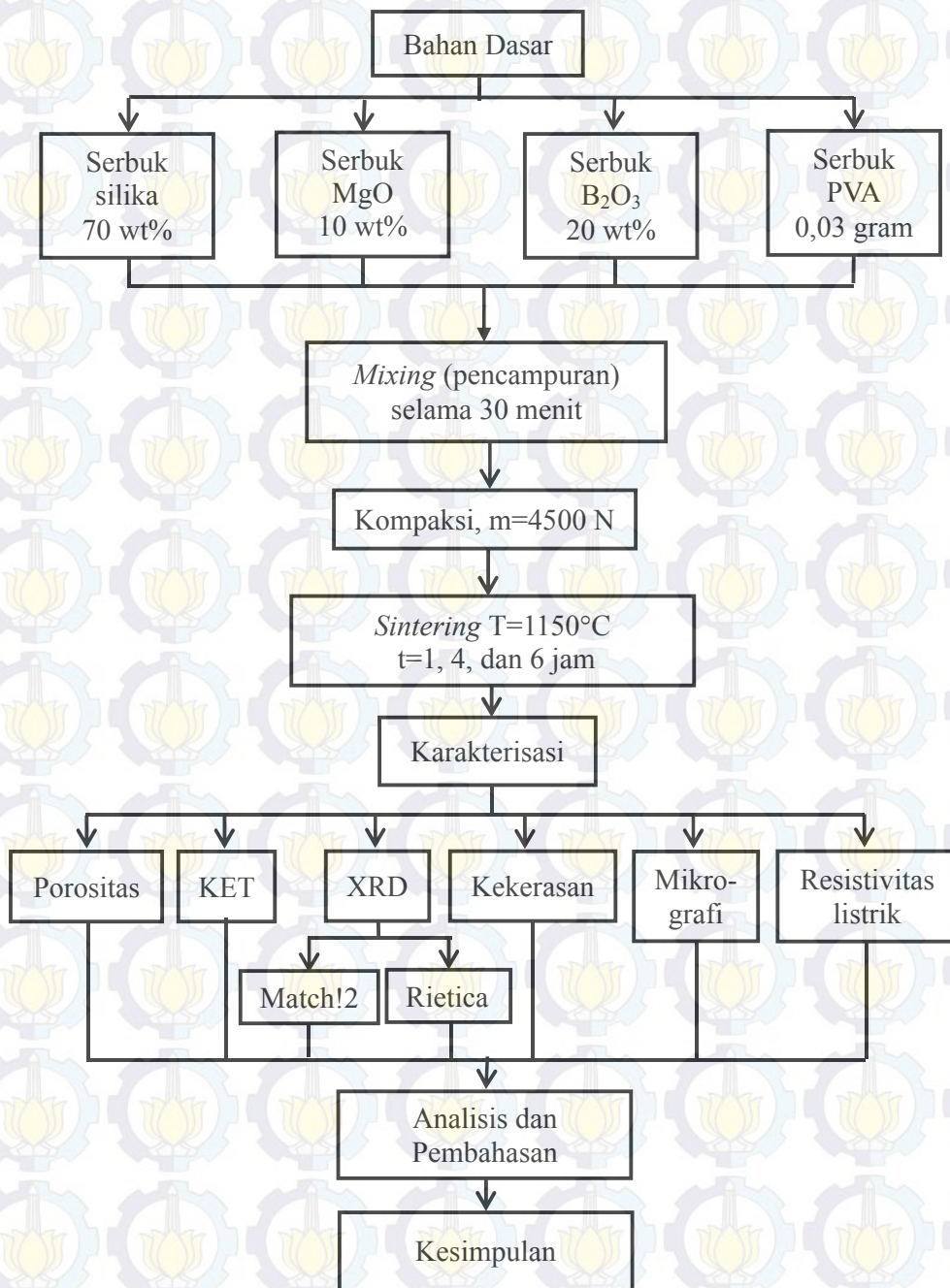
(b)



**Gambar 3.2** Diagram alir penelitian proses pemurnian silika (a) identifikasi kandungan beberapa pasir alam (b) pemurnian pasir Tanah Laut

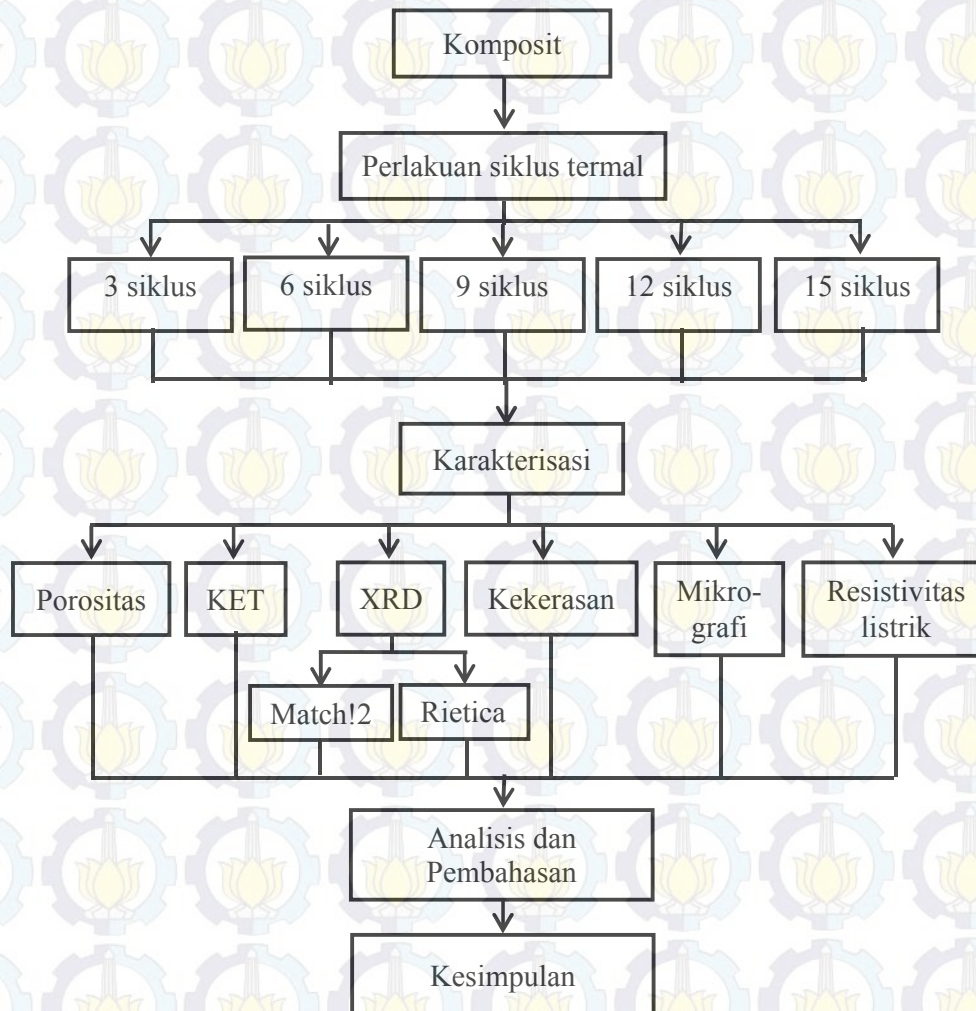


### 3.4.2 Sintesis Komposit Keramik Silika-Magnesia-Boria



**Gambar 3.3** Diagram alir penelitian untuk proses pembuatan komposit silika-magnesia-boria

### 3.4.3 Perlakuan Siklus Termal Pada Komposit Silika-Magnesia-Boria



**Gambar 3.4** Diagram alir penelitian untuk perlakuan siklus termal pada komposit silika-magnesia-boria



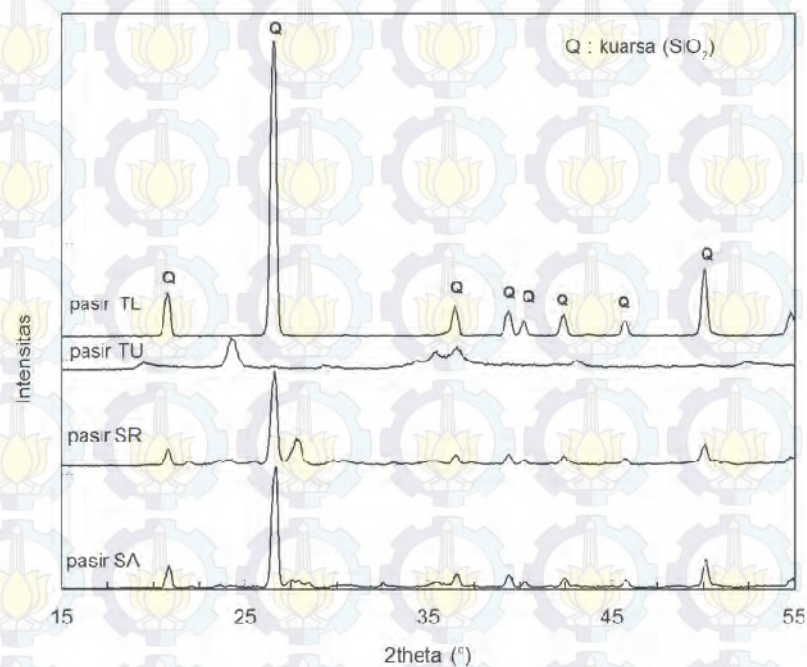
Halaman ini sengaja dikosongkan

## BAB 4

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1 Ekstraksi Silika

Pemurnian silika sebagai bahan dasar komposit silika diawali dengan identifikasi kandungan pasir alam yang diambil dari beberapa daerah di Kalimantan Selatan, yaitu Tanah Laut, Tambang Ulang, Sungai Riam, dan Sungai Asem-asem. Gambar 4.1 menunjukkan pola difraksi keempat pasir tersebut.



**Gambar 4.1** Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K $\alpha$ ) pasir Tanah Laut (TL), pasir Tambang Ulang (TU), pasir Sungai Riam (SR), dan pasir Sungai Asem-asem (SA).

Berdasarkan analisis kualitatif dapat diketahui bahwa hanya pasir TL yang mengandung fasa tunggal kuarsa (16-2490). Oleh karena itu selanjutnya pasir TL digunakan sebagai bahan dasar ekstraksi silika.

Pasir yang diambil dari Tanah Laut ini sebelum diekstraksi telah memiliki kandungan Si cukup tinggi yaitu 89,44 at% seperti ditunjukkan pada Tabel 4.1. Proses ekstraksi silika dilakukan dengan cara separasi magnetik dan perendaman

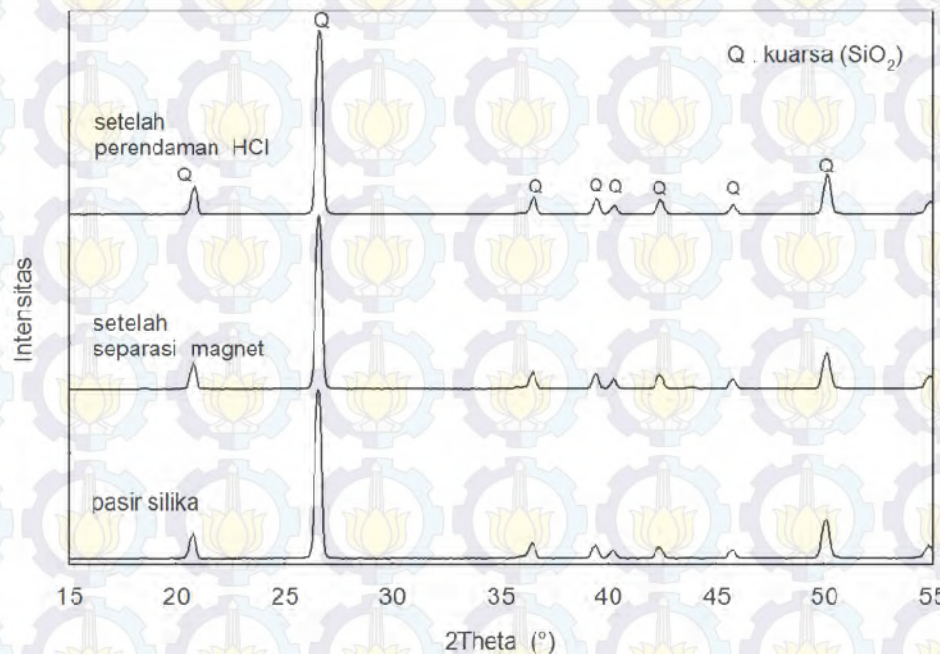


dalam HCl. Pada Tabel 4.1 ditunjukkan bahwa proses separasi dengan magnet permanen dapat mengurangi konsentrasi impuritas seperti unsur Fe, Cr, La, Ce, V, Mn, Zr dan Ti sehingga persentase Si meningkat hingga 95,69 at%. Proses selanjutnya adalah *milling* untuk mereduksi ukuran pasir hingga menjadi serbuk. Pada tahap ini juga bertujuan agar impuritas yang masih tersembunyi seperti Cr, Fe, Zr dan Ce dapat dikurangi. Perendaman serbuk dalam HCl 2M dilakukan untuk meningkatkan kemurnian serbuk silika. Metode ini efektif mengurangi kadar unsur Al, Ti, P, S, Zr, Ce dan Sn serta meningkatkan kadar Si hingga menjadi 95,87 at%.

**Tabel 4.1** Komposisi Unsur dalam Sampel Sebelum dan Setelah Ekstraksi

Formula	Konsentrasi (at%)			
	Pasir TL	Setelah separasi magnet	Setelah milling	Setelah perendaman HCl
Si	89,44	93,30	95,69	95,87
Cr	3,06		0,15	0,30
Al	2,54	3,19	1,44	1,21
Ti	1,27	0,49	0,49	0,42
Cl	1,17	1,46	0,91	0,95
Fe	1,15	0,15	0,19	0,25
P	0,44	0,87		
S	0,29	0,47	0,25	0,23
Zr	0,25	0,04	0,82	0,76
La	0,21			
Ce	0,06		0,04	
V	0,04			
Sn	0,04	0,04	0,02	
Mn	0,04			

Gambar 4.2 menunjukkan pola difraksi pasir silika sebelum dan setelah diekstraksi. Analisis identifikasi fasa menunjukkan fasa tunggal  $\text{SiO}_2$  kuarsa pada ketiga sampel dengan kode basis data 00-046-1045. Hasil ini memperkuat hasil uji XRF pada Tabel 4.1 bahwa telah diperoleh serbuk silika dengan kemurnian tinggi.



**Gambar 4.2** Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K $\alpha$ ) pasir Tanah Laut sebelum pemurnian dan setelah separasi magnetik dan perendaman HCl

#### 4.2 Karakteristik Komposit SMB

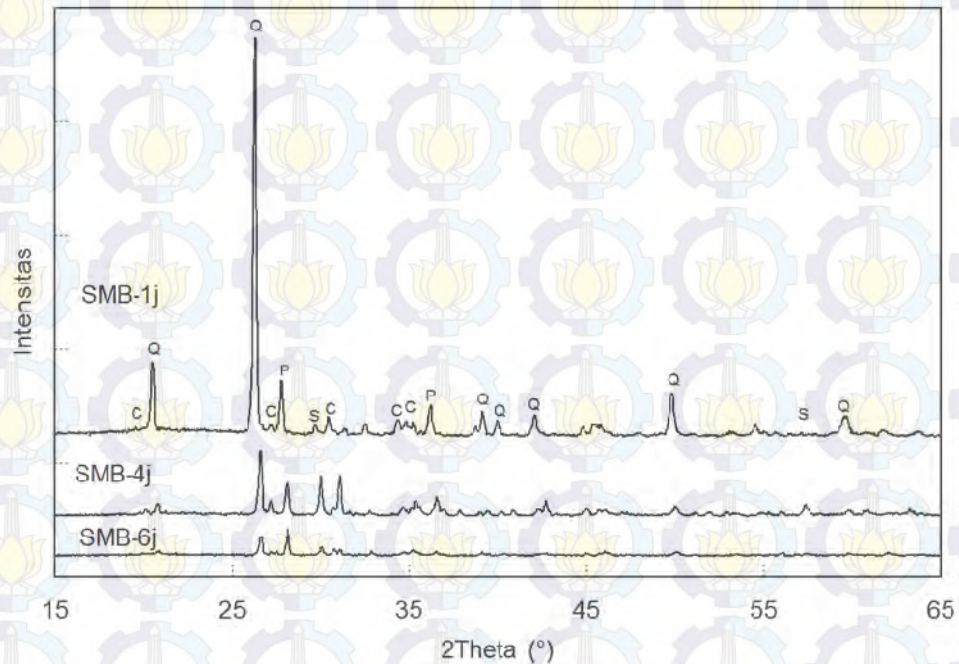
Serbuk silika dengan kemurnian tinggi yang telah diekstraksi dari pasir Tanah Laut selanjutnya digunakan sebagai bahan pembuatan komposit SMB. Komposit dibuat dengan mencampurkan SiO<sub>2</sub>, MgO, dan B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan perbandingan 70:10:20 masing-masing dalam fraksi berat, serta ditambahkan PVA yang berperan sebagai pengikat (*binder*). Campuran serbuk dikompaksi untuk mendapatkan bentuk pelet dan dilakukan proses sinter dengan temperatur 1150°C dan waktu penahanan 1, 4 dan 6 jam. Selanjutnya, analisis fasa dan karakteristik fisis dilakukan untuk memilih komposit yang potensial digunakan untuk material *seal fuel cell* yang kemudian diberi perlakuan siklus termal.

##### 4.2.1 Komposisi Fasa Komposit SMB

Pola difraksi sinar-x komposit SMB ditunjukkan pada Gambar 4.3. Berdasarkan analisis kualitatif, terdapat 4 fasa yang teridentifikasi pada komposit SMB1j, SMB4j dan SMB6j, yaitu kuarsa (SiO<sub>2</sub>), protoenstatit (MgSiO<sub>3</sub>),



klinoenstatit ( $\text{MgSiO}_3$ ), dan suanit ( $\text{Mg}_2\text{B}_2\text{O}_5$ ) dengan data kristalografi yang dapat dilihat pada Lampiran A.



**Gambar 4.3** Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K $\alpha$ ) komposit SMB1j, SMB4j, dan SMB6j

Pembentukan fasa ini dapat dipahami dari diagram fasa  $\text{SiO}_2$ - $\text{MgO}$  (Gambar 2.1). Dengan komposisi 70 wt%  $\text{SiO}_2$  dan temperatur 1150 °C, pada kesetimbangan akan terbentuk  $\text{MgSiO}_3$  yang merupakan polimorf (enstatit, klinoenstatit, dan protoenstatit). Klinoenstatit bersifat metastabil dengan struktur *primitive monoclinic* pada temperatur rendah dan *C-centered* pada temperatur tinggi serta diperkirakan mulai terbentuk pada temperatur sekitar 995 °C (Smyth, 1974). Reaksi pembentukannya ditunjukkan pada Persamaan 4.1 (Tavangarian dan Emadi, 2010).



Ketika temperatur mencapai 1000 °C, enstatit mulai terbentuk menurut Persamaan 4.2. Kemudian transformasi fasa terjadi dari enstatit menjadi protoenstatit menurut Persamaan 4.3 ketika temperatur mencapai 1200 °C.



Penambahan  $\text{B}_2\text{O}_3$  dalam jumlah banyak menjadikannya lebih reaktif dengan  $\text{MgO}$  sehingga membentuk suanit (Qasrawi, 2005) menurut Persamaan 4.5.



Selain membentuk suanit, berdasarkan diagram fasa  $\text{MgO-B}_2\text{O}_3$  (Gambar 2.2), pada komposit SMB dengan fraksi mol relatif  $\text{MgO}$  (terhadap  $\text{B}_2\text{O}_3$ ) sebesar 0,46 pada temperatur  $1150^\circ\text{C}$  akan terbentuk pula fasa *liquid* (lelehan  $\text{B}_2\text{O}_3$ ) yang kemudian berfungsi sebagai *sintering agent* untuk densifikasi komposit.

Pada komposit SMB,  $\text{MgO}$  telah habis karena bereaksi dengan  $\text{SiO}_2$  untuk membentuk protoenstatit dan klinoenstatit, serta bereaksi dengan  $\text{B}_2\text{O}_3$  membentuk suanit, dengan dibuktikan tidak teridentifikasi fasa periklas.

Analisis lanjut terhadap data difraksi komposit SMB yaitu mengetahui komposisi masing-masing fasa dengan metode penghalusan *Rietveld* menggunakan perangkat lunak *Rietica*. Plot hasil penghalusan dapat dilihat pada Lampiran B.

Luaran *Rietica* berupa komposisi fasa komposit SMB ditunjukkan pada Tabel 4.2. Sedangkan informasi beberapa parameter kecocokan berupa  $GoF$ ,  $R_p$ ,  $R_{wp}$ ,  $R_{exp}$  dan  $R_B$  dapat dilihat pada Lampiran C.

**Tabel 4.2** Komposisi Fasa Komposit SMB

Sampel	Komposisi Fasa (wt%)			
	Kuarsa	Protoenstatit	Klinoenstatit	Suanit
SMB1j	61,6(12)	16,7(8)	3,4(9)	18,4(11)
SMB4j	17,7(7)	10,6(3)	51,0(4)	20,7(17)
SMB6j	19,5(9)	31,4(15)	26,3(17)	22,8(17)



Penelitian tentang polimorfi enstatit ( $\text{MgSiO}_3$ ) telah banyak dilakukan. Namun pemahaman tentang stabilitas polimorfi ini belum dapat dijelaskan dengan baik. Hal ini dikarenakan proto- dan klintoenstatit bersifat ambigu, tidak dapat di-*quench* (didinginkan secara cepat), dan memberikan hasil yang tidak konsisten (Smyth, 1974). Pada temperatur ruang protoenstatit merupakan fasa metastabil (Goel, 2007). Akibatnya, fraksi berat fasa-fasa enstatit dalam komposit berubah saling berkompensasi.

#### 4.2.2 Densitas dan Porositas Komposit SMB

Uji Archimedes dilakukan guna mengetahui densitas *bulk* dan porositas komposit SMB. Hasilnya ditunjukkan pada Tabel 4.3.

**Tabel 4.3** Densitas *Bulk* dan Porositas Komposit SMB

Sampel	Densitas <i>Bulk</i> ( $\text{g/cm}^3$ )	Porositas (%)
SMB1j	1,55(1)	1,89(1)
SMB4j	1,62(1)	0,62(1)
SMB6j	1,64(1)	0,53(1)

Dapat dilihat bahwa porositas komposit SMB semakin kecil terhadap pertambahan waktu penahanan sinter. Turunnya porositas ini dikarenakan waktu penahanan sinter yang lebih lama memberikan proses densifikasi pada komposit yang lebih lama sehingga lebih *dense*. Proses densifikasi ini tidak lepas dari peranan  $\text{B}_2\text{O}_3$  pada saat proses sinter meleleh pada temperatur 480 °C (Wang dkk, 2009) dan menutupi pori-pori (Yang dan Cheng, 2009). Hasil ini sesuai dengan beberapa penelitian terdahulu yang telah dilakukan oleh Yang dan Cheng (1999), Pascual (2007), Zhou dkk (2009), dan Dewa (2014) bahwa penambahan  $\text{B}_2\text{O}_3$  dapat membantu proses densifikasi sistem keramik.

#### 4.2.3 Kekerasan Komposit SMB

Melalui pengujian kekerasan dengan metode *Vickers* diperoleh data diameter penjejakan pada komposit SMB oleh indenter. Selanjutnya nilai

kekerasan komposit SMB dihitung menggunakan Persamaan 3.3 dan ditunjukkan pada Tabel 4.4.

**Tabel 4.4** Kekerasan Komposit SMB

Sampel	Kekerasan	
	(kg/mm <sup>2</sup> )	(GPa)
SMB1j	232,9	2,3
SMB4j	283,9	2,8
SMB6j	535,4	5,3

Nilai kekerasan yang semakin meningkat berkaitan dengan penurunan porositas pada sampel seiring bertambahnya waktu penahanan sinter. Partikel-partikel pada komposit yang rapat memberikan nilai kekerasan yang besar.

#### 4.2.4 Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB

Nilai koefisien ekspansi termal (KET) secara teoretik dapat diperoleh dengan pendekatan *Rule of Mixture* (Persamaan 3.4). Data luaran fraksi berat dan densitas fasa (Lampiran C) dari analisis kuantitatif fasa komposit dengan perangkat lunak *Rietica* digunakan untuk menentukan %vol sesuai Persamaan 3.5 (dapat dilihat pada Lampiran D). Nilai KET terhitung pada komposit juga bergantung pada nilai KET fasa penyusun masing-masing. Diketahui nilai KET keempat fasa adalah  $11,2 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ;  $9,8 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ;  $12,0 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ; dan  $5,0 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$  berturut-turut untuk fasa kuarsa, protoenstatit, klinoenstatit, dan suanit (Mahapatra dan Lu, 2010). Kemudian dari perhitungan KET menggunakan Persamaan 3.4 diperoleh seperti pada Tabel 4.5.

**Tabel 4.5** Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB

Sampel	KET Terhitung ( $\times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ )
SMB1j	9,87
SMB4j	10,03
SMB6j	9,45



#### 4.2.5 Resistivitas Listrik Komposit SMB

Tabel 4.6 menunjukkan nilai resistivitas komposit SMB dengan waktu penahan sinter yang berbeda.

**Tabel 4.6** Resistivitas Listrik Komposit SMB pada Temperatur 800 °C

Sampel	Resistivitas Listrik ( $\times 10^5 \Omega \text{ cm}$ )
SMB1j	2,2
SMB4j	2,5
SMB6j	2,6

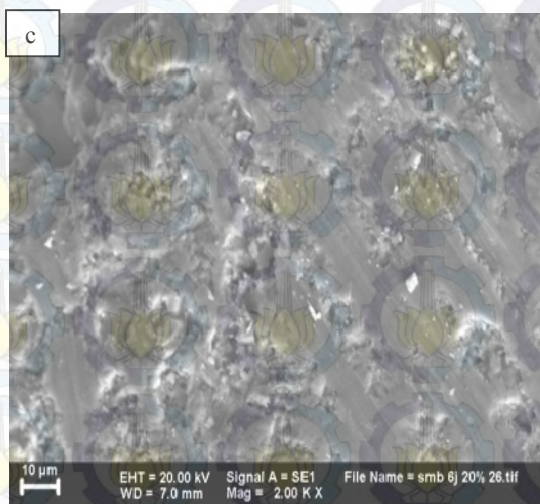
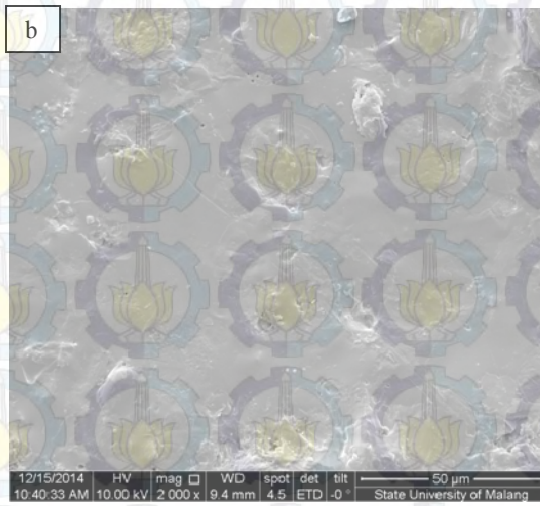
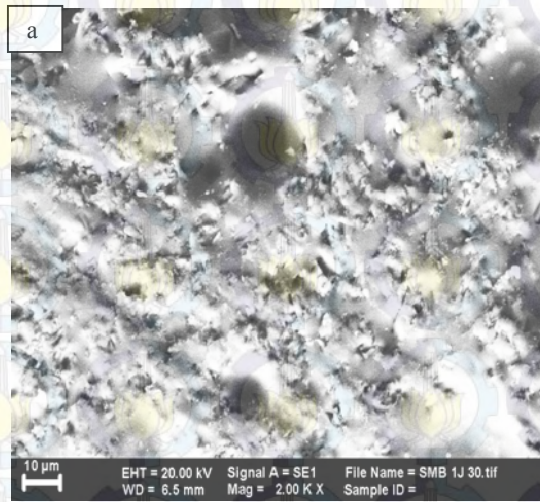
Pengukuran sifat listrik ini dilakukan pada temperatur operasi *fuel cell*, yaitu 800 °C. Nilai resistivitas untuk ketiga sampel berkisar antara  $(2,2\text{-}2,6) \times 10^5 \Omega \text{ cm}$  yang masih dalam rentang persyaratan *seal fuel cell* (Mahapatra dan Lu, 2010a).

#### 4.2.6 Mikrografi Komposit SMB

Gambar SEM ini mengkonfirmasi nilai porositas (Tabel 4.3) bahwa komposit SMB1j terlihat porus sedangkan SMB4j dan SMB6j terlihat lebih padat. Pada komposit SMB1j tampak topografi permukaan yang masih terdapat banyak butiran-butiran kasar yang diduga  $\text{SiO}_2$  yang berdasarkan analisis fasa sebanyak 61,6 wt%, sedangkan hanya sedikit  $\text{B}_2\text{O}_3$  yang mengisi celah-celahnya sehingga fasa suanit yang memiliki densitas tinggi ( $2,9 \text{ g/cm}^3$ ) hanya sedikit terbentuk, yaitu 18,5 wt%.

Dibandingkan pada komposit SMB1j, pori-pori tampak berkurang pada permukaan komposit SMB4j dan SMB6j karena penambahan waktu penahanan sinter yang diberikan. Permukaan komposit SMB4j dan SMB6j tampak rapat. Waktu penahanan sinter yang semakin meningkat telah, secara visual, mengurangi porositas, berkaitan dengan proses densifikasi yang semakin baik karena peranan  $\text{B}_2\text{O}_3$  yang semakin menyebar menutupi pori-pori, baik sebagai fasa “cair” maupun dalam bentuk suanit.





**Gambar 4.4** Citra SEM mode SE komposit (a) SMB1j, (b) SMB4j, dan (c) SMB6j.



Berdasarkan karakteristik komposit yang telah disampaikan, yaitu komposisi fasa, porositas, kekerasan, koefisien ekspansi termal, resistivitas listrik, dan mikrofografi, dapat diketahui bahwa komposit SMB4j lebih berpotensi menjadi material *seal fuel cell* dengan sifat-sifatnya yang sesuai dengan persyaratan, serta proses sintesis yang tidak terlalu lama (4 jam). Sehingga langkah selanjutnya adalah pengujian stabilitas sifat-sifat komposit SMB4j terhadap siklus termal dengan perlakuan seperti Gambar 3.1.

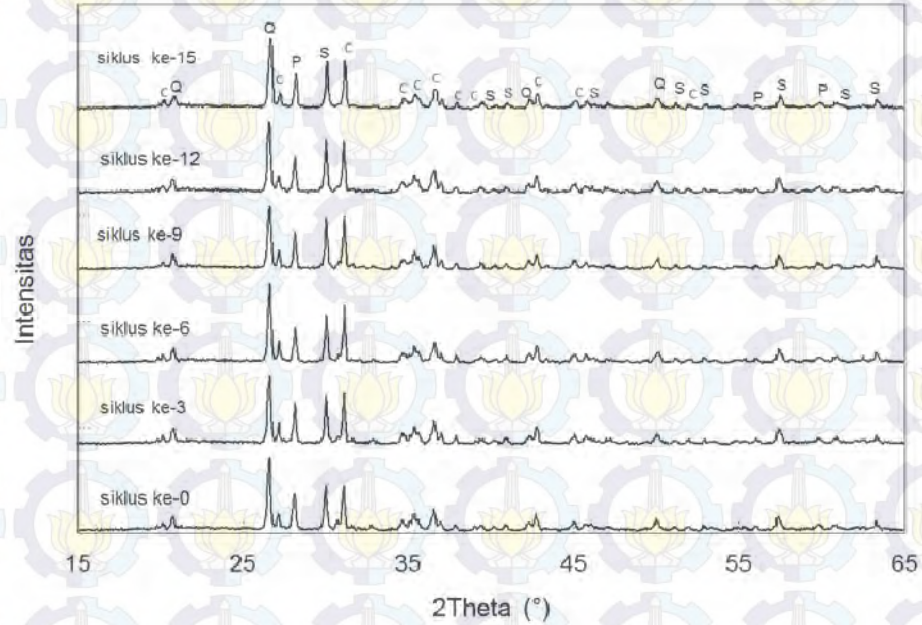
#### **4.3 Karakteristik Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal**

Sistem kerja *fuel cell* adalah bersiklus, maka semua bagian dalam sistem *fuel cell* harus tahan terhadap kondisi tersebut, termasuk *seal*. Sehingga penelitian selanjutnya adalah uji kestabilan komposit SMB4j sebagai material *seal* yang dikondisikan sesuai dengan lingkungan kerja *fuel cell*, yaitu dalam proses siklus termal yang berulang. Sifat-sifat *seal* harus tidak berubah terhadap perlakuan siklus termal. Berikut merupakan karakteristik komposit SMB4j sebagai material *seal* ketika diberi perlakuan siklus termal.

##### **4.3.1. Komposisi Fasa Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal**

Pola difraksi komposit SMB4j setelah diberi beberapa siklus termal ditunjukkan oleh Gambar 4.5. Dapat dilihat pada bahwa bentuk dan ketinggian puncak-puncak pada pola difraksi komposit siklus ke-0 hingga ke-15 hampir sama. Hal ini mengindikasikan fasa-fasa yang terkandung adalah sama.





**Gambar 4.5** Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K $\alpha$ ) komposit SMB4j pada beberapa siklus termal

Analisis kualitatif mengkonfirmasi bahwa komposit SMB4j setelah perlakuan siklus termal hingga siklus ke-15 mengandung fasa yang sama seperti sebelum diberi perlakuan (siklus ke-0). Tidak ada perubahan fasa yang terjadi. Fasa-fasa tersebut adalah kuarsa, protoenstatit, klinoenstatit, dan suanit.

Selanjutnya analisis kuantitatif pola difaksi komposit SMB4j pada beberapa siklus ditunjukkan pada Tabel 4.7. Plot hasil penghalusan dapat dilihat pada Lampiran B. Sedangkan informasi beberapa parameter kecocokan berupa  $GoF$ ,  $R_p$ ,  $R_{wp}$ ,  $R_{exp}$  dan  $R_B$  dapat dilihat pada Lampiran C.



**Tabel 4.7** Komposisi Fasa Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal

Sampel	Komposisi Fasa (wt%)			
	Kuarsa	Protoenstatit	Klinoenstatit	Suanit
SMB4j-0s	17,7 (7)	10,6 (3)	51,0 (4)	20,7 (17)
SMB4j-3s	17,9 (7)	6,2 (1)	54,5 (14)	21,4 (13)
SMB4j-6s	18,2 (7)	8,7 (14)	53,1 (10)	20,0 (14)
SMB4j-9s	15,9 (7)	6,0 (12)	56,1 (16)	22,0 (14)
SMB4j-12s	17,2 (7)	6,0 (15)	55,4 (20)	21,4 (4)
SMB4j-15s	18,0 (7)	9,3 (20)	51,5 (17)	21,1 (13)

Keterangan: Kode sampel “s” menyatakan jumlah siklus.

Komposisi fasa komposit SMB4j relatif tidak berubah. Hal ini dikarenakan temperatur siklus berada di bawah temperatur sinter saat sintesis komposit. Dan berdasarkan diagram fasa  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$  (Gambar 2.1), pada temperatur 800 °C tidak terdapat fasa baru yang terbentuk. Sehingga fasa yang terbentuk di awal tidak mengalami perubahan. Setelah melewati perlakuan siklus termal hingga siklus ke-15, tidak ada perubahan fasa dan komposisi fasa-fasanya memiliki fluktuasi yang relatif rendah, sehingga komposit SMB4j dapat dikatakan memiliki kestabilan fasa yang baik. Kestabilan fasa yang dimiliki oleh komposit ini akan mempengaruhi sifat-sifat yang lain.

#### 4.3.2. Densitas dan Porositas Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal

Analisis densitas dan porositas dilakukan pada komposit setelah diberi perlakuan siklus termal. Hasilnya ditunjukkan pada Tabel 4.8.

**Tabel 4.8** Densitas dan Porositas Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal

Sampel	Densitas ( $\text{g/cm}^3$ )	Porositas (%)
SMB4j-0s	1,62 (1)	0,62 (1)
SMB4j-3s	1,63 (1)	0,61 (1)
SMB4j-6s	1,63 (1)	0,60 (1)
SMB4j-9s	1,62 (1)	0,61 (1)
SMB4j-12s	1,62 (1)	0,63 (1)
SMB4j-15s	1,63 (1)	0,61 (1)

Densitas dan porositas SMB4j setelah perlakuan siklus termal dapat dikatakan stabil hingga siklus ke-15. Tidak adanya perubahan komposisi fasa yang signifikan pada komposit turut berperan pada relatif stabilnya porositas dan densitas.

#### 4.3.3. Kekerasan Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal

Nilai kekerasan komposit SMB4j setelah perlakuan siklus termal ditunjukkan pada Tabel 4.9. Komposisi fasa yang terkandung dalam komposit SMB4j turut mempengaruhi karakteristik mekaniknya. Pada Tabel 4.10 dapat dilihat bahwa kekerasan komposit SMB4j relatif stabil di antara kisaran 2,7-2,8 GPa. Tidak adanya perubahan fasa dan rendahnya fluktuasi komposisi fasa seperti yang telah dijelaskan sebelumnya memberikan nilai kekerasan yang relatif tidak berubah pula.

**Tabel 4.9** Kekerasan Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal

Sampel	Kekerasan	
	(kg/mm <sup>2</sup> )	(GPa)
SMB4j-0s	283,9	2,8
SMB4j-3s	279,4	2,7
SMB4j-6s	284,9	2,8
SMB4j-9s	275,6	2,7
SMB4j-12s	278,9	2,7
SMB4j-15s	277,5	2,7

#### 4.3.4. Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal

Tabel 4.10 menunjukkan nilai koefisien ekspansi termal (KET) komposit SMB4j setelah melewati perlakuan siklus termal. Nilai KET teoretik diperoleh menggunakan pendekatan *Rule of Mixture* (Persamaan 3.4), sedangkan nilai terukurnya didapatkan dengan pengujian menggunakan *Thermomechanical Analysis* (TMA).



**Tabel 4.10** Koefisien Ekspansi Termal Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal

Sampel	KET ( $\times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ )	
	Terhitung	Terukur
SMB4j-0s	10,03	10,24
SMB4j-3s	10,08	10,23
SMB4j-6s	10,12	10,25
SMB4j-9s	10,05	10,26
SMB4j-12s	10,08	10,20
SMB4j-15s	10,03	10,21

Koefisien ekspansi termal (KET) merupakan perbandingan panjang relatif terhadap panjang awal material yang berhubungan dengan temperatur. Nilai KET komposit SMB4j pada tiap siklus dapat dikatakan tidak terjadi perubahan yang signifikan. Hal ini berkaitan fasa-fasa penyusun komposit yang komposisi dan parameter kisinya relatif tidak berubah (dapat dilihat pada Lampiran 7).

#### 4.3.5. Resistivitas Listrik Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal

Uji sifat listrik pada komposit SMB4j setelah diberi perlakuan siklus termal dilakukan untuk mengetahui kestabilan resistivitas listrik pada komposit. Tabel 4.11 menunjukkan nilai resistivitas listrik komposit yang berkisar antara  $(2,5-2,8) \times 10^5 \text{ } \Omega \text{ cm}$ .

**Tabel 4.11** Resistivitas Listrik Komposit SMB4j pada Temperatur 800°C.

Sampel	Resistivitas Listrik ( $\times 10^5 \text{ } \Omega \text{ cm}$ )
SMB4j-0s	2,5
SMB4j-3s	2,6
SMB4j-6s	2,7
SMB4j-9s	2,8
SMB4j-12s	2,5
SMB4j-15s	2,6

#### 4.3.6. Mikrografi Komposit SMB4j Akibat Perlakuan Siklus Termal

Analisis mikrografi menggunakan SEM (mode SE) dilakukan pada komposit setelah melewati beberapa proses siklus termal hingga siklus ke-15. Topografi permukaan komposit dapat dilihat pada Gambar 4.6.

Permukaan komposit dari awal sebelum dikenai perlakuan siklus termal hingga siklus ke-15 relatif sama. Permukaan masih tertutup rapat oleh fasa “cair”  $B_2O_3$  yang telah meleleh pada temperatur sinter  $1150^{\circ}C$  selama 4 jam.





**Gambar 4.6** Citra SEM mode SE komposit SMB4j pada siklus (a) ke-0 (a) ke-3 (c) ke-6 (d) ke-9 (e) ke-12 (f) ke-15.



#### 4.4 Diskusi

##### 4.4.1. Ekstraksi Silika

Sintesis *seal fuel cell* pada penelitian ini menggunakan silika yang berasal dari pasir alam yang diekstraksi. Diawali dengan pemilihan pasir dari empat tempat di Propinsi Kalimantan Selatan yang berbeda, yaitu Tanah Laut, Tambang Ulang, Sungai Riam, dan Sungai Asem-asem, kemudian pasir Tanah Laut terpilih karena memiliki pola difraksi *single phase* kuarsa yang mengindikasikan kemurnian  $\text{SiO}_2$  yang lebih tinggi dibandingkan dengan ketiga pasir yang lain. Hasil uji XRF pada Tabel 4.1 mengkonfirmasi bahwa kandungan Si pada pasir Tanah Laut cukup tinggi yaitu 89,44 at%. Selanjutnya pasir Tanah Laut ini menjalani pemurnian silika.

Proses ekstraksi pada pasir Tanah Laut dilakukan dengan dua metode, yaitu separasi magnetik menggunakan magnet permanen dan perendaman HCl. Separasi magnetik pada pasir terbukti cukup efektif mengurangi impuritas sehingga persentase Si meningkat hingga 95,69 at%. Proses selanjutnya adalah *milling* untuk mereduksi ukuran pasir hingga menjadi serbuk. Pada tahap ini juga bertujuan agar impuritas yang masih tersembunyi dapat dikurangi. Proses separasi magnetik kembali dilakukan pada serbuk untuk mengoptimalkan reduksi unsur-unsur magnetik. Selanjutnya perendaman serbuk dalam HCl 2M dilakukan untuk meningkatkan kemurnian serbuk silika. Metode ini hanya efektif meningkatkan kadar Si hingga menjadi 95,87 at%. Kemurnian yang cukup tinggi ini dikonfirmasi dengan pola difraksi serbuk yang menunjukkan fasa tunggal kuarsa. Selanjutnya serbuk silika ini digunakan sebagai bahan dasar sintesis komposit *sealing material* pada *fuel cell*.

##### 4.4.2. Seleksi Komposit SMB sebagai *Sealing material*

*Fuel cell* adalah *electrochemical devices* yang mengkonversi hidrogen atau hidrokarbon menjadi listrik tanpa ada bagian yang terbuang selama operasi. Di antara beberapa jenis sistem *fuel cell*, SOFCs (*solid oxide fuel cell*) merupakan yang paling diminati karena keunggulannya dalam hal efisiensinya yang tinggi (Mahapatra dan Lu, 2010b). Ada dua jenis SOFC, yaitu tubular dan planar. SOFC planar lebih dipilih karena (1) memiliki *power density* yang tinggi, (2) bekerja



pada rentang temperatur yang luas, (3) berpotensi pada aplikasi stasioner dan *mobile*, (4) desain fleksibel dan mudah difabrikasi, (5) harga yang murah (US Department of Energy, 2004). Untuk desain planar, *sealing* dibutuhkan di sepanjang ujung komponen *cell*. *Seal* merupakan bagian yang sangat penting dalam sistem, karena berkaitan langsung dengan efisiensi kerja *fuel cell*. Beberapa persyaratan untuk material *seal fuel cell* ini telah dibahas pada Tabel 2.1.

*Glass seal* adalah sistem oksida multikomponen yang terdiri atas *glass network former*, *glass network modifier*, *intermediate*, dan *additive* (Mahapatra, 2010b). *Glass network former* yang biasa digunakan adalah  $\text{SiO}_2$  atau  $\text{B}_2\text{O}_3$ , *glass network modifier* berupa oksida alkali atau alkali tanah, sedangkan *intermediate* dapat menjadi *glass network former* atau *glass network modifier*, bergantung komposisinya, dan beberapa *additive* berupa oksida logam transisi atau oksida logam tanah jarang. Pada penelitian ini digunakan bahan  $\text{SiO}_2$  sebagai *glass network former*. Untuk aplikasi SOFC, keramik berbasis alkali tanah lebih sering digunakan (Fergus, 2005), sedangkan alkali biasanya dicegah karena mudah bereaksi dengan komponen *fuel cell* yang lain (Nielsen dkk, 2004), sehingga dalam penelitian ini digunakan magnesium oksida. Dan sebagai *intermediate* digunakan  $\text{B}_2\text{O}_3$ . Selain itu, manfaat digunakannya  $\text{B}_2\text{O}_3$  yaitu dapat mengurangi meningkatkan *wetting ability* (Mahapatra dan Lu, 2010a) dan sebagai *sintering agent* dalam proses sinter (Yang dan Cheng, 1999).

Keramik padat sebagai *sealing material* dengan bahan-bahan  $\text{SiO}_2$ - $\text{MgO}$ - $\text{B}_2\text{O}_3$  ini disintesis dengan metode *solid state reaction*. Dengan temperatur sinter dan waktu penahanan tertentu akan terjadi perubahan dimensi, pengurangan jumlah dan ukuran pori-pori serta densifikasi yang bergantung pada bentuk dan distribusi serbuk, komposisi serbuk, dan prosedur sinter (German, 1994). Karena titik lelehnya yang rendah ( $480^\circ\text{C}$ ) (Wang dkk, 2009), dalam proses sinter  $\text{B}_2\text{O}_3$  berperan sebagai *liquid phase* yang membantu proses densifikasi dalam sampel.  $\text{B}_2\text{O}_3$  mencair dan mengalir menuju daerah-daerah kosong (pori-pori).

Tabel 4.3 menunjukkan bahwa ketiga sampel dengan komposisi sama yang disinter pada temperatur  $1150^\circ\text{C}$  dan waktu penahanan yang berbeda. Waktu penahanan sinter yang semakin meningkat menghasilkan densitas *bulk* yang



semakin meningkat pula, seperti yang dilaporkan peneliti lain (Lan dkk, 2011). Hal ini berkaitan dengan proses densifikasi yang semakin baik, karena peranan  $B_2O_3$  yang semakin menyebar menutupi pori-pori (Yang dan Cheng, 1999).

Selain itu, porositas ketiga sampel juga dapat dipahami dari komposisi fasa masing-masing. Fasa yang terbentuk pada komposit dari bahan  $SiO_2$ ,  $MgO$ , dan  $B_2O_3$  dengan perbandingan 70:10:20 dalam persen berat pada berbagai waktu penahanan sinter menghasilkan jenis fasa-fasa yang sama namun berbeda kuantitas. Proses pembentukan fasa-fasa tersebut telah dijelaskan pada subbab 4.2.1. Setiap fasa memiliki struktur kristal masing-masing. Porositas muncul pada ikatan kristal antar butir (*grain*). Diketahui bahwa densitas kuarsa, protoenstatit, klinoenstatit, dan suanit berturut-turut adalah  $2,6 \text{ g/cm}^3$ ,  $2,5 \text{ g/cm}^3$ ,  $2,5 \text{ g/cm}^3$ , dan  $2,9 \text{ g/cm}^3$ . Seiring bertambahnya waktu penahanan sinter, densitas sampel semakin tinggi. Hal ini diduga karena komposisi fasa suanit yang memiliki densitas relatif lebih tinggi semakin banyak.

Penahanan waktu sinter yang semakin lama menyebabkan fasa *liquid*  $B_2O_3$  semakin banyak mengisi pori-pori sehingga membentuk ikatan yang semakin kuat antar partikel dalam sampel. Hasil uji SEM yang memberikan pengamatan mikrografi mendukung peranan  $B_2O_3$  yang semakin rapat mengisi ruang antar partikel-partikel kasar yang, menurut data XRD, adalah kuarsa, proto- dan klinoenstatit, dan suanit. Hal ini mendorong sampel memiliki kekerasan yang meningkat seiring bertambahnya waktu penahanan sinter.

Salah satu parameter yang sangat penting bagi *sealing material* adalah koefisien ekspansi termal.  $KET_{seal}$  tidak boleh berbeda lebih dari  $1 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  dengan komponen lain yang berdampingan untuk mencegah adanya *pore* dan *crack* (Mahapatra dan Lu, 2010b) akibat ketidakcocokan (*mismatch*)  $KET$  selama operasi. Analisis  $KET$  pada komposit secara teoretik (terhitung) berdasarkan *Rule of Mixture* erat kaitannya dengan fasa-fasa yang terbentuk pada sampel. Komposit SMB1j, 4j, dan 6j memiliki nilai  $KET$  yang berbeda dikarenakan komposisi fasa masing-masing komposit berbeda satu dengan yang lain, namun ketiganya masih dalam rentang persyaratan material *seal*, yaitu  $9,5\text{-}12,0 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  menurut Mahapatra dan Lu (2010a).



Karakteristik lain yang dibutuhkan *seal fuel cell* adalah resistivitas listrik ( $\rho$ ). Resistivitas listrik harus  $>10^4 \Omega \text{ cm}$  untuk mencegah *shunting* (Lara dkk, 2006). *Glass* yang mengandung oksida alkali tanah umumnya mempunyai nilai resistivitas listrik  $> 10^4 \Omega \text{cm}$  yang cenderung meningkat dengan radius ionik dan valensi ion *modifier* (Shelby dkk, 2005), contoh: BaO-ZnO-*silicate glass* ( $\sim 1,3 \times 10^9 \Omega \text{cm}$ ) adalah 10 kali lebih besar dibandingkan BaO-MgO-*silicate glass* ( $\sim 5,8 \times 10^8 \Omega \text{cm}$ ), berkaitan dengan radius ionik  $\text{Zn}^{2+}$  yang lebih besar (Lara dkk, 2006). Pengukuran sifat listrik pada komposit SMB dilakukan pada temperatur operasi *fuel cell*, yaitu  $800^\circ \text{C}$ . Nilai resistivitas untuk ketiga sampel berkisar antara  $(2,5-2,8) \times 10^5 \Omega \text{ cm}$  dan secara umum masih dalam rentang persyaratan *seal fuel cell*. Perubahan waktu penahanan sinter secara praktis tidak memberikan efek terhadap resistivitas listrik pada sampel sebab komposisi awal komposit hampir sama sedangkan resistivitas listrik bergantung pada komposisi fasa (Lara dkk, 2006).

Berdasarkan analisis karakteristik komposit SMB yang disinter pada temperatur  $1150^\circ \text{C}$  dengan waktu penahanan 1, 4, dan 6 jam, komposit yang memenuhi persyaratan *seal fuel cell* ditampilkan pada Tabel 4.13.

**Tabel 4.13** Rekap Karakteristik Komposit SMB

Sampel	Porositas	Kekerasan	KET	Resistivitas Listrik
Persyaratan <i>seal</i>	$< 1\%$	Tahan pada 14-35 kPa	9,5-12 ppm/ $^\circ \text{C}$	$\geq 10^4 \Omega \text{cm}$
SMB1j	×	√	√	√
SMB4j	√	√	√	√
SMB6j	√	√	×	√

Keterangan : x tidak memenuhi persyaratan  
√ memenuhi persyaratan

Porositas komposit SMB1j sebesar 1,89 %, sehingga tidak memenuhi persyaratan *seal*. Sedangkan komposit SMB6j tidak memenuhi persyaratan KET. Oleh karena itu peneliti memilih komposit SMB4j sebagai kandidat *seal* yang selanjutnya akan diuji kestabilannya terhadap perlakuan siklus termal.



#### 4.4.3. Kestabilan Komposit SMB4j terhadap Siklus Termal

*Sealing material* memiliki dua persyaratan dasar. Pertama adalah mampu menyegel komponen-komponen lain (Mahapatra dan Lu, 2010a). Pada Tabel 2.1 telah disampaikan beberapa karakteristik yang dibutuhkan agar material dapat melakukan fungsi *sealing* dan pada Sub-Bab 4.4.2 telah dibahas bahwa komposit SMB4j telah memenuhi persyaratan tersebut dan dipilih sebagai material *seal*. Kedua, *seal* harus stabil saat *cell* beroperasi (siklus termal) dalam jangka waktu yang lama (Mahapatra dan Lu, 2010a). Hal ini merupakan bagian yang paling menantang dalam perkembangan pembuatan *sealing material* (Chou dan Stevenson, 2003). Oleh karena itu, komposit SMB4j yang telah dipilih sebagai material *seal* perlu untuk diketahui kemampuan stabilitasnya terhadap perlakuan siklus termal.

Perlakuan siklus termal yang diberikan pada sampel adalah sesuai dengan temperatur operasi SOFC, yaitu 800 °C (Mahapatra dan Lu, 2010b). Empat karakteristik yang sangat fundamental pada *glass seal* yang digunakan dalam operasi termal jangka panjang antara lain koefisien ekspansi termal (KET), *glass temperature* ( $T_g$ ), *gas-leakage*, dan kekuatan atau performa mekanik (Wei, 2008). Pada penelitian ini, dikaji pengaruh perlakuan termal hingga siklus kelima belas terhadap KET,  $T_g$ , performa mekanik berupa kekerasan komposit SMB4j. Selain itu, juga dikaji kestabilan komposisi fasa, porositas, resistivitas listrik, dan mikrografi komposit.

Fasa yang ada pada komposit SMB4j sebelum dikenai perlakuan siklus termal adalah kuarsa, protoenstatit, klinoenstatit, dan suanit. Analisis kualitatif terhadap puncak-puncak pola difraksi komposit setelah mengalami 3, 6, 9, 12, dan 15 siklus termal menunjukkan bahwa tidak terjadi perubahan jenis maupun kuantitas fasa kemudian dibuktikan dengan analisis menggunakan perangkat lunak *Match!*. Berdasarkan analisis lebih lanjut, komposisi fasa-fasa tersebut relatif tetap hingga siklus kelima belas. Fasa-fasa ini terbentuk pada temperatur sinter 1150 °C sehingga pada temperatur 800 °C relatif stabil, tidak terjadi pembentukan fasa baru, transformasi, maupun deformasi sehingga komposisinya pun tetap.



Kestabilan komposisi fasa akan mendukung kestabilan sifat-sifat yang lain. Salah satunya adalah KET. Dengan pendekatan *Rule of Mixture*, pada beberapa sampel dengan komposisi fasa yang relatif tetap akan diperoleh KET terhitung yang relatif tetap pula. Hal ini dikonfirmasi dengan hasil uji TMA yang memberikan nilai KET terukur menggunakan instrumen TMA relatif tetap dengan rentang (10,21-10,26) ppm/°C.

Porositas komposit SMB4j akibat perlakuan siklus termal hingga siklus kelima belas berada pada rentang (0,60-0,63) %. Hal ini dipengaruhi karena tidak adanya perubahan jenis dan kuantitas fasa-fasa kristalin sehingga tidak adanya perubahan struktur-struktur kristal dan celah antar *grain* dalam komposit. Porositas komposit SMB4j yang senilai 0,62 % merupakan hasil densifikasi pada proses sinter 1150 °C dan waktu tahan 4 jam, jadi pemanasan sebesar 800 °C tidak memberikan proses densifikasi lanjut pada komposit. Kestabilan porositas komposit SMB4j juga dapat dikonfirmasi dengan topografi permukaannya menggunakan instrumen SEM yang relatif tetap ditunjukkan pada Gambar 4.6. Nilai porositas dan topografi permukaan komposit SMB yang relatif tidak berubah mengakibatkan kekerasannya juga relatif stabil.

Resistivitas listrik yang harus dimiliki oleh material *seal* adalah  $>10^4 \Omega \text{ cm}$  untuk mencegah *electrical shunting*. Muatan ionik berkontribusi terhadap konduktivitas ionik, sedangkan elektron dan *hole* berkontribusi terhadap konduktivitas elektronik. Pada *glass* yang mengandung oksida alkali dan alkali tanah, konduktivitas dikontrol oleh muatan ionik, sedangkan yang mengandung logam transisi dikontrol oleh elektron dan *hole* (Kingery, 1976). Mahapatra dan Lu (2010a) menjelaskan strategi yang dapat dipertimbangkan untuk mencegah penurunan resistivitas listrik akibat temperatur, yaitu mendesain *glass* yang stabil secara termal dan kimia sehingga komposisi dan struktur tidak berubah terhadap temperatur. Pada penelitian ini telah diperoleh hasil bahwa komposit SMB stabil secara komposisi fasa hingga siklus termal kelima belas. Hal ini mendukung perolehan nilai resistivitas listrik yang stabil pula.

Karakteristik penting lainnya listrik yang harus dimiliki oleh material *seal* adalah temperatur transisi glas ( $T_g$ ).  $T_g$  merupakan hal yang penting untuk



menentukan ketangguhan mekanik *seal* (Fergus, 2005). Pada Lampiran F diperoleh nilai  $T_g$  komposit SMB4j dari keluaran *Thermomechanical Analyzer* (TMA). Ditunjukkan bahwa nilai  $T_g$  komposit SMB4j relatif stabil, yaitu pada rentang temperatur antara 559-577 °C. Hrma dkk (1988) dan Singh (2007) menyampaikan bahwa nilai  $T_g$  dari *seal glass* harus sedikit lebih rendah dibandingkan temperatur operasi *cell* untuk mencegah terjadinya *termal stress* dan *self-heal cracks*. Sedangkan Mahapatra dan Lu (2010b) menambahkan bahwa untuk *low temperature* SOFC,  $T_g$  harus berada pada rentang 450-650 °C. Nilai  $T_g$  komposit SMB berada pada rentang tersebut. Beberapa hasil penelitian telah melaporkan bahwa untuk *silicate glass* nilai  $T_g$  berada pada rentang 675-775 °C (Lara dkk, 2004; Pascual dkk, 2006 dan 2007; dan Mahapatra dkk, 2009). Nilai  $T_g$  komposit SMB berada di bawah rentang tersebut. Hal ini disebabkan karena rendahnya nilai  $T_g$   $B_2O_3$  murni (~275 °C) memicu nilai  $T_g$  yang rendah pada  $B_2O_3$ -containing glass (Scholze, 1991).

Reaksi terhadap komponen *cell* lain merupakan aspek penting pada *sealing material*. Namun, pada penelitian ini karakteristik tersebut tidak dikaji. Hasil penelitian lain melaporkan bahwa pada oksida alkali tanah, *silicate* yang mengandung barium adalah yang paling reaktif, sedangkan yang mengandung magnesium yang paling *adherent*. Interaksinya komponen lain berupa *yttria-stabilized zirconia*, *silicate* yang mengandung magnesium akan membentuk interface yang *adherent* dan stabil (Schwickert dkk, 2003).

Berdasarkan uraian di atas, komposisi fasa, porositas, kekerasan, KET,  $T_g$ , resistivitas listrik, dan mikrostruktur komposit SMB4j menunjukkan stabilitas yang relatif baik terhadap perlakuan siklus termal hingga siklus kelima belas. Rentang perubahan karakteristik dan deviasinya dapat dilihat pada Lampiran I. Proses siklus termal dengan temperatur yang lebih rendah dibandingkan temperatur pembentukan awal material (*sintering*) mengakibatkan material cenderung mempertahankan sifat-sifatnya.

Untuk aplikasi stasioner *seal* harus tahan lebih dari 100 siklus termal dan 1000 siklus termal untuk aplikasi *mobile* (Solten dkk, 2003). Sehingga masih perlu dilakukan riset lebih lanjut terkait perlakuan termal dengan siklus yang lebih



banyak sehingga dapat diketahui performa komposit SMB4j dalam jangka panjang. Selain itu, karakteristik *sealing* yang penting lainnya yang perlu dikaji pada komposit ini adalah *gas-leakage* dan reaksinya terhadap komponen *cell* lain.



## BAB 5

### PENUTUP

#### 5.1. Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan, dapat disimpulkan sebagai berikut:

1. Proses identifikasi terhadap empat pasir alam menunjukkan bahwa pasir Tanah Laut memiliki kandungan fasa tunggal kuarsa ( $\text{SiO}_2$ ) dan komposisi unsur Si yang tinggi, yaitu 89,44 at%. Ekstraksi silika dari pasir ini telah berhasil dilakukan dan diperoleh serbuk silika kuarsa dengan kemurnian mencapai 95,87 at% dan dengannya telah berhasil disintesis komposit keramik silika-magnesia-boria.
2. Proses sinter 1, 4, dan 6 jam menghasilkan terbentuknya fasa kuarsa ( $\text{SiO}_2$ ), protoenstatit ( $\text{MgSiO}_3$ ), klintoenstatit ( $\text{MgSiO}_3$ ), dan suanit ( $\text{Mg}_2\text{B}_2\text{O}_5$ ) dengan komposisi yang berbeda-beda pada ketiga sampel. Analisis kekerasan dan resistivitas listrik menunjukkan bahwa komposit SMB yang disinter dengan waktu penahanan 1, 4, maupun 6 jam memenuhi persyaratan sebagai material *seal fuel cell*. Namun nilai porositas  $< 1\%$  hanya dipenuhi oleh komposit yang disinter 4 dan 6 jam - didukung oleh data mikrografinya yang tampak padat (tidak porus). Sementara itu, komposit SMB6j memiliki nilai koefisien ekspansi termal di luar rentang yang disyaratkan. Oleh karena itu, SMB4j dipilih sebagai kandidat *sealing material* dengan karakteristik porositas 0,62 %, kekerasan 2,8 GPa, KET  $10,3 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ , dan resistivitas listrik  $2,5 \times 10^5 \text{ } \Omega \text{ cm}$ .
3. Perlakuan siklus termal pada temperatur 800  $^\circ\text{C}$  selama 1 jam per siklus diberikan pada komposit SMB4j untuk mengetahui kestabilannya. Hingga siklus kelima belas, komposit SMB4j menunjukkan kestabilannya pada karakteristik komposisi fasa, porositas, kekerasan, koefisien ekspansi termal, resistivitas listrik, dan struktur mikrografi.





## 5.2. Saran

Beberapa saran untuk penelitian selanjutnya:

1. Perlu dilanjutkan perlakuan siklus termal pada komposit SMB4j, mengingat *fuel cell* beroperasi pada siklus yang sangat panjang.
2. Perlu dilakukan uji kebocoran gas (*gas-leakage*) dan uji kestabilan kimia kaitannya dengan reaksi material *seal* terhadap komponen *cell* lain.



## DAFTAR PUSTAKA

- Aristia, G. (2013), *Analisis Komposisi Fasa Komposit Pasir Silika dan MgO*, Tugas Akhir, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.
- Australian Standard 1774. 1989, *Australian Standard 1774: Refractories and Refractory Materials-Physical Test Methods: As 1774. 13-1989: Permanent Dimensional Change (Book)*.
- Beall, G.H. (1993), *Glass-ceramics: Recent Developments and Applications. Ceram. Trans.* 30.
- Chakraborty, A.K., dan Maiti, K.N. (2000), "Effects of Substitution of Quartz by Rajpardi Silica Sand on The Thermomechanical Properties of Ceramics", *Interceram*, Vol 49, hal. 241-266.
- Chou, Y. dan Stevenson, J.W. (2002), "Thermal Cycling and Degradation Mechanism of Compressive Mica-based Seals for Solid Oxide Fuel Cells", *Journal of Power Sources*, Vol. 112, hal. 376-383.
- Chou, Yeong-Shyung, dan Jeffry W. Stevenson. (2003), "Mid-Term Stability of Novel Mica-Based Compressive Seals for Solid Oxide Fuel Cells", *Journal of Power Sources*, Vol. 115, hal. 274-278.
- Choudhury, A., Chandra, H., dan Arora, A. (2013), "Application of Solid Oxide Fuel Cell Technology for Power", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 20, hal. 430-442.
- Dewa, E. (2014), *Sintesis dan Karakterisasi Densitas, Porositas, Fasa, dan Ekspansi Termal Komposit Keramik Berbasis Pasir Silika-Magnesia-Boria*, Tesis Magister, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.
- Fergus, J.W. (2005), "Sealant for Solid Oxide Fuel Cells", *Journal of Power Sources*, Vol. 147, hal. 46-57.
- German, R.M., Pavan, S., dan Seong, J.P. (2009), *Liquid Phase Sintering*, Vol. 44, hal. 1-39. DOI 10.1007/s10853-008-3008-0.
- Goel, A., Tulyaganov, D.U., Agathopoulos, S., Ribeiro, M.J., dan Ferreira, J.M.F. (2007), "Synthesis and Characterization of  $\text{MgSiO}_3$ -containing Glass-ceramics", *Ceramics International*, Vol. 33, hal 1481-1487.



Guo, X., Song, K., Liang, S., dan Zheng, C. (2012), "Thermal Expansion Behavior of MgO/Cu Composite with Lower MgO Volume Fraction", *Materials Research Bulletin*, Vol. 47, hal. 3211–3215.

Hao, J., Zan, Q., Ai, D., Ma, J., Deng, C., dan Xu, J. (2012), "Structure and High Temperature Physical Properties of Glass Seal materials in Solid Oxide Electrolysis Cell", *Journal of Power Sources*, Vol. 214, hal. 75–83.

Heimann, R.B. (2010), "Super Conducting Ceramics. Classics and Advanced Ceramics", *Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA*, hal. 319-346.

Hrma, P., Han, W.T., dan Cooper A.R. (1988), *J. Non-Cryst. Solids*, Vol. 102, hal. 88-94.

Kazanovic, C., Stubicar, M., Stubicar, N., Tomasic, M., Ivankovic, H., dan Vladimir, B. (2005), "Synthesis of Forsterite Powder from Zeolit Precursor", hal. 203–208.

Kingery, W.D., Bowen, H.K., dan Uhlmann, D.R., (1976), *Introduction to Ceramics*, Wiley & Son, New York.

Lara, C., Pascual, M.J., Keding, R., dan Duran, A. (2004), *J. Non-Cryst. Solids*, Vol. 348, hal. 149.

Lara, C., Pascual, M.J., Keding, R., dan Duran, A. (2006), *J. Power Sources*, Vol. 157, hal. 377-384.

Lan, J., Xiao-Yan, C., Guo-Ming, H., dan Yu, M. (2011), "Effect of Additives on Properties of Aluminium Titanate Ceramics." *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, Vol. 21, hal. 1574–1579.

Mahapatra, M.K., dan Lu, K. (2010a), "Seal Glass for Solid Oxide Fuel Cells", *Journal of Power Sources*, Vol. 195, hal. 7129–7139.

Mahapatra, M.K., dan Lu, K. (2010b), "Glass-Based Seals for Solid Oxide Fuel and Electrolyzer Cells- A Review", *Materials Science and Engineering R*, Vol. 67, hal. 65–85.

Mahapatra, M.K., Lu, K., dan Bodnar, R.J. (2009), *Appl. Phys. A*, Vol. 95. Hal. 493.

Nielson, K.A., Solvang, M., Poulsen, F.W., dan Larsen, P.H. (2004), *Ceram. Eng. Sci. Proc.* Vol. 25, No. 3, hal. 309-314.

Pascual, M.J., Guillet, A., dan Duran, A. (2007), "Optimization of Glass-Ceramic



- Sealant Compositions in The System  $\text{MgO-BaO-SiO}_2$  for Solid Oxide Fuel Cells (SOFC).” *Journal of Power Sources*, Vol. 169, hal. 40–46.
- Pascual, M.J., Lara, C., dan Duran, A. (2007), *Eur. J. Glass. Sci. Technol. B.*, Vol. 47, hal. 572.
- Pratapa, S. (2009), *Analisis Data Difraksi Menggunakan Metode Rietveld*, Surabaya.
- Qasrawi, A.F., Kayed, T.S., Mergen, A., dan Guru, M. (2005), “Synthesis and Characterization of  $\text{Mg}_2\text{B}_2\text{O}_5$ ”, *Materials Research Bulletin*, Vol. 40, hal. 583-589.
- Rachadel, P.L., Birol, H., Oliveira, A.P.N., dan Hotza, D. (2012), “Development of Alternative Glass Ceramic Seal for a Planar Solid Oxide Fuel Cell”, *Advances in Materials Science and Engineering*, Vol. 2012, hal 1-6.
- Scholze, H., (1991), *Glass Nature, Structure, and Properties*, Springer Verlag, New York.
- Schwickert, T., Reisgen, U., Geasee, P., dan Conradt, R. (2003), *J. Adv. Mater.* Vol. 35, No. 4, hal. 44-47.
- Shelby, J.E., (2005), *Introduction to Glass Science and Technology*, The Royal Society of Chemistry, Cambridge.
- Singh, R.N. (2007), *Int. J. Appl Ceram. Tech.*, Vol. 4, hal. 134-144.
- Smyth, J.R. (1974), “Experimental Study on The Polymorphism of Enstatite”, *American Mineralogist*, Vol. 59, hal. 345–352.
- Solten, D., Haart, L.G.J.B.d., dan Blumm, L. (2003), *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, Vol. 24, hal. 263-272.
- Suhala, Supriatna, dan Arifin, M. (1997), *Bahan Galian Industri*, Pusat Penelitian dan Pengembangan Teknologi Material, Bandung.
- Syarif, D.G., Hildayanti, S., Mulyani, R.H., dan Soepriyanto, S. (2011), “Characteristics of  $\text{ZrO}_2$  Added- $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  Ceramics for Matrix of Inert Matrix Nuclear Fuel (IMF)”, *Indonesian Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 12.
- Szostak, R. (1998), “Molecular Sieves: Principles of Synthesis and Identification”, *Springer*.
- Tavangarian, F., Emadi, R. (2010), “Synthesis of Nanocrystalline Forsterite



( $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ) Powder by Combined Mechanical Activation and Thermal Treatment”, *Materials Research Bulletin*, Vol. 45, hal. 388-391.

Wang, S.F., Wang, Y., Hsu, Y., dan Chuang, C.C. (2009), “Effect of Additives on The Thermal Properties and Sealing Characteristic of  $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  Glass-Ceramic for Solid Oxide Fuel Cell Application”, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 34, hal. 8235–8244.

Wei, W.C.J. (2008), “Sealing Glass-Ceramics for Solid Oxide Fuel Cell.” *Recent Patents Materials Science*, Vol. 1, hal. 217–222.

Yang, C.F. dan Cheng, C.M. (1999), “The Influence of  $\text{B}_2\text{O}_3$  on The Sintering of  $\text{MgO-CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  Composite Glass Powder”, *Ceramics International*, Vol. 25, hal. 383–387.

Zhou, H., Wang, H., Li, K., Zhang, M., dan Yao, X. (2009), “Effect of  $\text{B}_2\text{O}_3$  Additions on the Sintering Temperature and Microwave Dielectric Properties of  $5.5\text{Li}_2\text{O-Nb}_2\text{O}_5\text{-7TiO}_2$  Ceramics”, *Taylor & Francis*, Vol. 381, hal. 17-23.

Zuhailawati, H., Samayamutthirian, P., dan Haizu, C.H.M. (2007), “Fabrication of Cost of Aluminium Matrix Composite Reinforced with Silica Sand”, *Journal of Physics Science*, Vol. 18, hal. 47–55.



## LAMPIRAN A

### Data ICSD dan COD

#### A. Data ICSD untuk SiO<sub>2</sub> (kuarsa)

COL ICSD Collection Code 63532  
 DATE Recorded Dec 19, 1988; updated Dec 19, 1999  
 NAME Silicon oxide  
 MINR Quartz  
 FORM Si O<sub>2</sub>  
       = O<sub>2</sub> Si  
 TITL Crystal structures of quartz and magnesium germanate by profile  
       analysis of synchrotron-radiation high-resolution powder data.  
 REF Journal of Applied Crystallography  
       JACGA 21 (1988) 182-191 Issue 2  
 AUT Will G, Bellotto M, Parrish W, Hart M  
 CELL a=4.912(0) b=4.912 c=5.404(0)  $\alpha$ =90.0  $\beta$ =90.0  $\gamma$ =120.0  
       V=112.9 Z=3  
 SGR P 32 2 1 (154) - trigonal  
 CLAS 32 (Hermann-Mauguin) - D3 (Schoenflies)  
 PRS hP9  
 ANX AX2  
 PARM Atom\_ No OxStat Wyck -----X-----Y-----Z----- -SOF-  
       Si 1 4.000 3a 0.4704(4) 0. 2/3  
       O 1 -2.000 6c 0.4136(6) 0.2676(6) 0.7857(5)  
 WYCK c a  
 TF Atom  $\hat{a}(1,1)$   $\hat{a}(2,2)$   $\hat{a}(3,3)$   $\hat{a}(1,2)$   $\hat{a}(1,3)$   $\hat{a}(2,3)$   
       Si 1 0.0059 0.0034 0.0043 0.0017 -0.0010 -0.0020  
           (7) (10) (8) (5)  
       O 1 0.0080 0.0090 0.0090 0.0120 -0.0020 0.0000  
           (20) (30) (20) (30) (30) (20)  
 REM SNP (synchrotron radiation, powder diffraction)  
 REM M PDF 46-1045  
 RVAL 0.016



**B. Protoenstatit (MgSiO<sub>3</sub>)**

Data 9003432

Loop publ author name 'Thompson, R. M.', 'Downs, R. T.',

Publ section title; Model pyroxenes II: Structural variation as a function of tetrahedral rotation model protoenstatite at 1360 K after Yang and Ghose (1995) with O<sub>3</sub>-O<sub>3</sub>-O<sub>3</sub> angle = 168.4 and model oxygen radius = 1.321 Note:

Atoms Mg, Si, and O are assigned to atomic positions for convenience;

Journal\_name\_full 'American Mineralogist'

Journal\_page\_first 614

Journal\_page\_last 628

Journal\_volume 89

Journal\_year 2004

Chemical\_formula\_sum 'Mg O3 Si'

Chemical\_name\_mineral Pyroxene-ideal

Space\_group\_IT\_number 60

Symmetry\_space\_group\_name\_Hall '-P 2n 2ab'

Symmetry\_space\_group\_name\_H-M 'P b c n'

Cell\_angle\_alpha 90

Cell\_angle\_beta 90

Cell\_angle\_gamma 90

Cell\_length\_a 9.268

Cell\_length\_b 9.102

Cell\_length\_c 5.255

Cell\_volume 443.298

Exptl\_crystal\_density\_diffn 3.008

Local\_cod\_chemical\_formula\_sum\_orig 'Mg Si O3'

Cod\_database\_code 9003432

Mg 0.00000 0.08333 0.75000

Mg 0.00000 0.25000 0.25000

Si 0.30820 0.08333 0.08333

O1 0.13370 0.08333 0.08333

O2 0.36630 0.25000 0.11260

O3 0.36630 -0.01460 0.31870

### C. Suanit (Mg<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)

Data 2004240  
Publ section title; Monoclinic Mg<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub>;  
Journal\_name\_full 'Acta Crystallographica C'  
Journal\_page\_first 2469  
Journal\_page\_last 2471  
Journal\_volume 51  
Journal\_year 1995  
Chemical\_formula\_moiety 'Mg2 B2 O5'  
Chemical\_formula\_sum 'B2 Mg2 O5'  
Chemical\_formula\_weight 150.24  
Space\_group\_IT\_number 14  
Symmetry\_cell\_setting monoclinic  
Symmetry\_space\_group\_name\_Hall '-P 2ybc'  
Symmetry\_space\_group\_name\_H-M 'P 1 21/c 1'  
Cell\_angle\_alpha 90  
Cell\_angle\_beta 104.26(3)  
Cell\_angle\_gamma 90  
Cell\_formula\_units\_Z 4  
Cell\_length\_a 9.197(4)  
Cell\_length\_b 3.1228(9)  
Cell\_length\_c 12.303(4)  
Cell\_measurement\_temperature 293  
Cell\_volume 342.5(4)  
Exptl\_crystal\_density\_diffn 2.91  
Local\_cod\_cif\_authors\_sg\_H-M 'P 21/c'  
Local\_cod\_chemical\_formula\_sum\_orig 'Mg2 B2 O5'  
Mg1 1 .1023(2) .2133(8) .18580(10) .0056(4)  
Mg2 1 .6440(2) .2961(8) .89470(10) .0065(5)  
O1 1 .4957(4) -0.8020(10) .1370(3) .0071(8)  
O2 1 .2582(4) -0.2780(10) .2381(3) .0058(8)  
O3 1 .1804(4) .2200(10) .0463(3) .0071(8)  
O4 1 -.0535(4) -0.2910(10) .1522(3) .0065(8)  
O5 1 .3005(4) -0.4260(10) -.0693(3) .0069(8)  
B1 1 .3573(5) -0.228(2) .3411(4) .0050(10)  
B2 1 .1683(6) -0.654(2) -.0606(4) .0050(10)



#### D. **Klinoenstatit (MgSiO<sub>3</sub>)**

Data 9007016

Loop publ author name: 'Shimobayashi, N.', 'Miyake, A.', 'Kitamura, M.', 'Miura, E.'

Publ section title; Molecular dynamics simulations of the phase transition  
between low temperature and high temperature clinoenstatites

Sample: from Smyth and Burnham, 1972;

Journal\_name\_full 'Physics and Chemistry of Minerals'

Journal\_page\_first 591

Journal\_page\_last 599

Journal\_volume 28

Journal\_year 2001

Chemical\_formula\_sum 'Mg O3 Si'

Chemical\_name\_mineral Clinohypersthene

Space\_group\_IT\_number 15

Symmetry\_space\_group\_name\_Hall '-C 2yc'

Symmetry\_space\_group\_name\_H-M 'C 1 2/c 1'

Cell\_angle\_alpha 90

Cell\_angle\_beta 109.91

Cell\_angle\_gamma 90

Cell\_length\_a 9.869

Cell\_length\_b 9.059

Cell\_length\_c 5.334

Cell\_volume 448.373

Exptl\_crystal\_density\_diffn 2.974

Local\_cod\_chemical\_formula\_sum\_orig 'Mg Si O3'

Cod\_original\_cell\_volume 448.374

Cod\_database\_code 9007016

MgM1 0.00000 0.90400 0.25000

MgM2 0.00000 0.26800 0.25000

SiT 0.29500 0.08400 0.26700

O1 0.12900 0.09800 0.15100

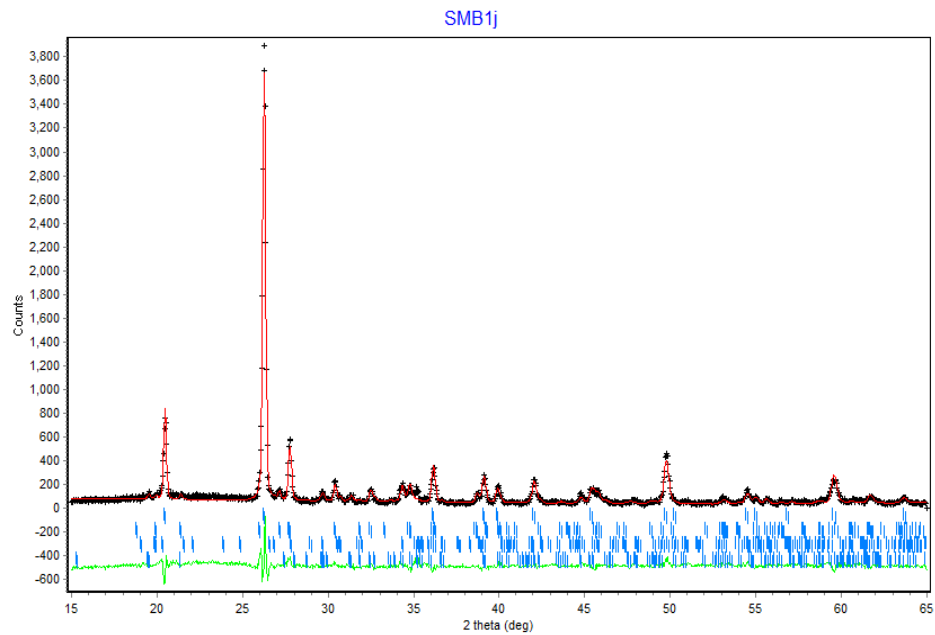
O2 0.37700 0.24000 0.35200

O3 0.34500 0.00600 0.04600

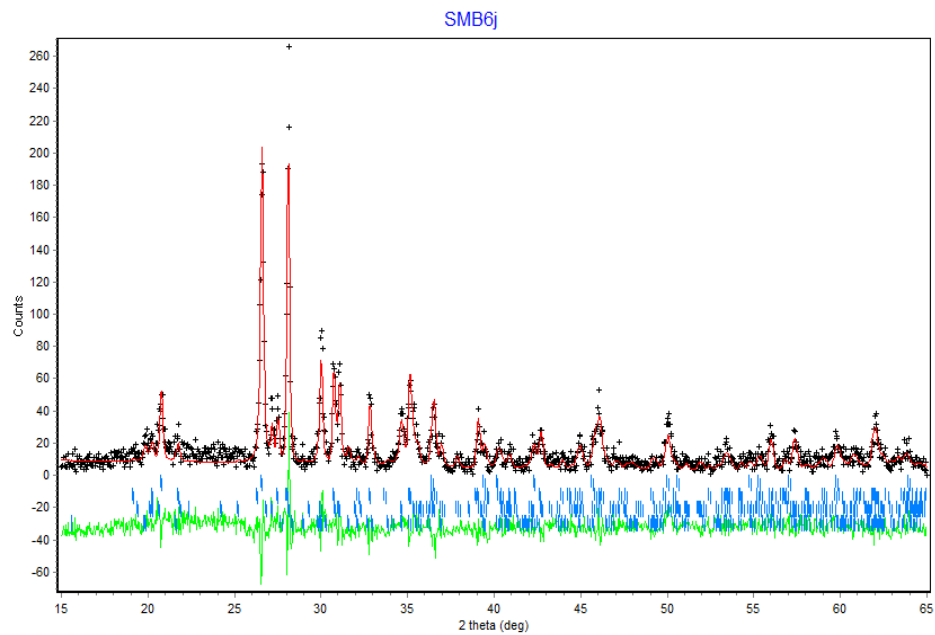
## LAMPIRAN B

### Plot Hasil Penghalusan (*Rietveld Refinement*) dengan Perangkat Lunak *Rietica*

#### A. Komposit Keramik SMB1j

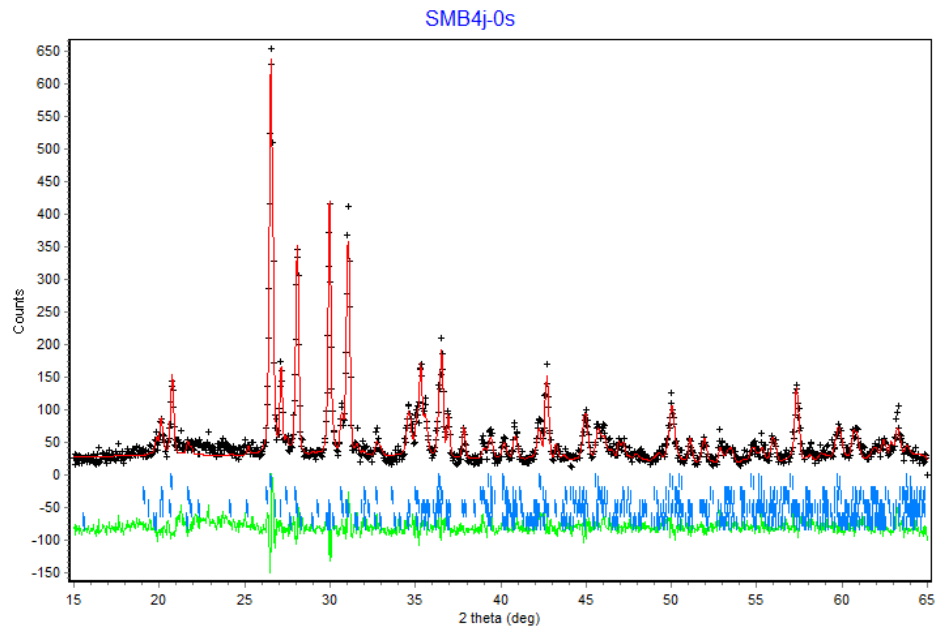


#### B. Komposit Keramik SMB6j

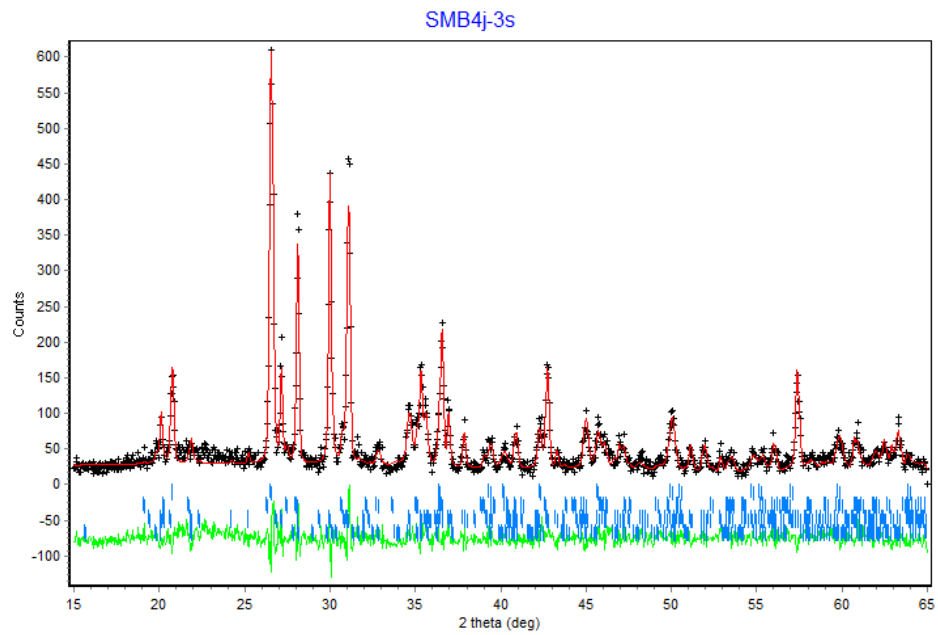




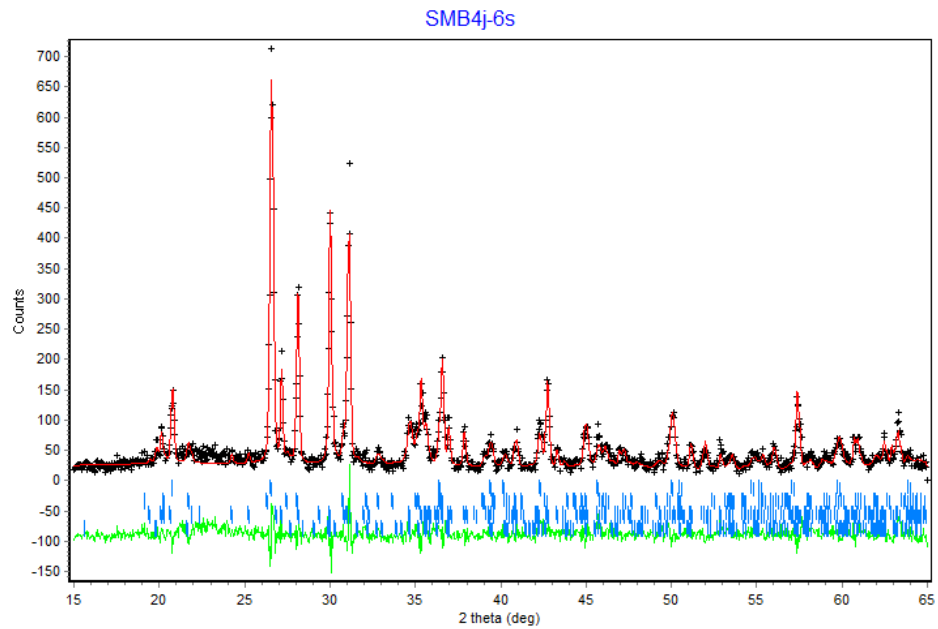
### C. Komposit Keramik SMB4j-0s



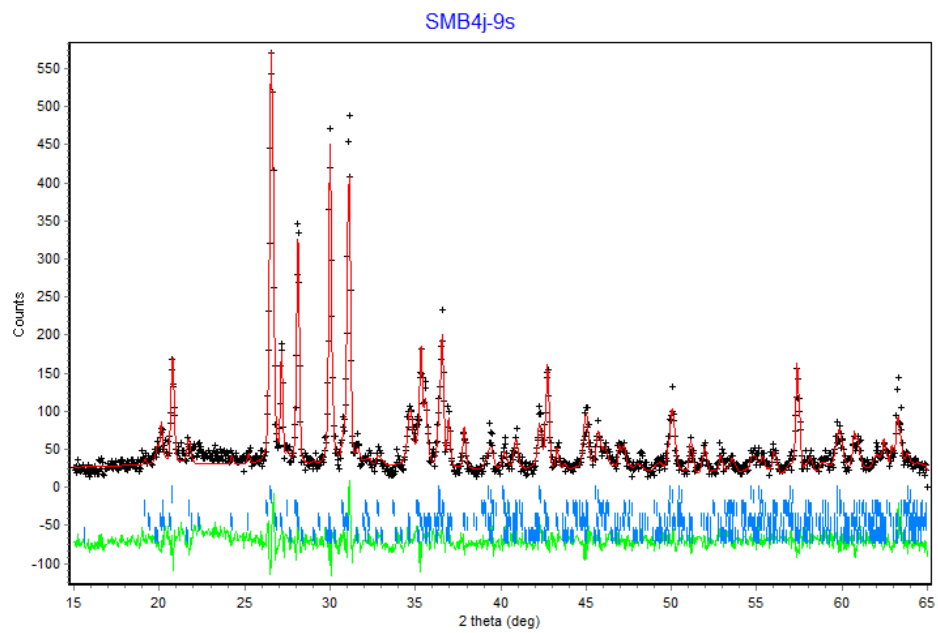
### D. Komposit Keramik SMB4j-3s



### E. Komposit Keramik SMB4j-6s

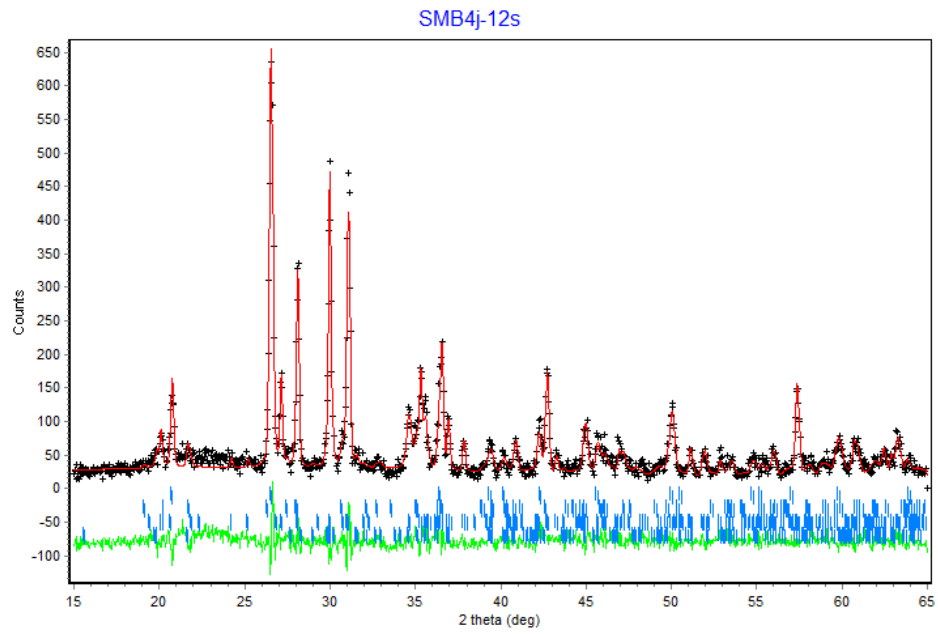


### F. Komposit Keramik SMB4j-9s

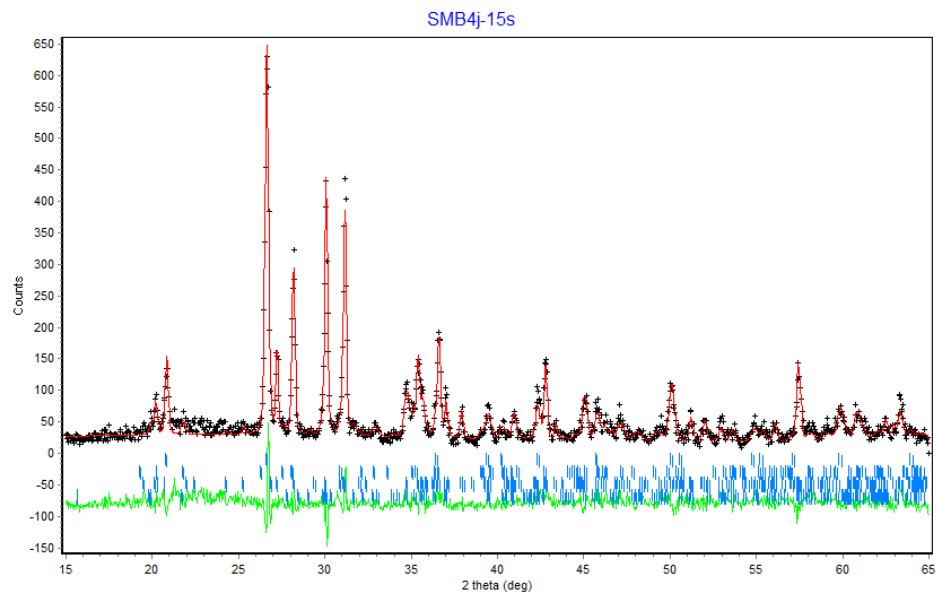




### G. Komposit Keramik SMB4j-12s



### H. Komposit Keramik SMB4j-15s



## LAMPIRAN C

### Keluaran Penghalusan *Rietveld* dengan Menggunakan *Rietica*

#### A. Serbuk Silika Silika (SiO<sub>2</sub>) Hasil Ekstraksi

Parameter		Value
FoM	Rp (%)	9.77
	Rwp (%)	14.39
	Rexp (%)	8.28
	GoF (%)	3.015
Parameter kisi	a	4.9226 (3)
	b	4.9226 (3)
	c	5.4164 (4)
Density (g/cm <sup>3</sup> )		2.632
Derived Bragg R-factor		2.70



## B. Komposit Keramik SMB

Sampel	FASA											
	Quartz			Protoenstatite			Clinoenstatite			Suanite		
	Prosentase		Parameter Kisi	Prosentase		Parameter Kisi	Prosentase		Parameter Kisi	Prosentase		Parameter Kisi
SMB1j	77.4 (12) mol%	61.6 (12) wt%	a=4.922(1) b=4.922(1) c=5.408(1)	12.5 (6) mol%	16.7 (8) wt%	a=9.242(3) b=8.738(3) c=5.320(1)	0.3 (1) mol%	3.4 (9) wt%	a=9.612(9) b=8.777(11) c=5.173(7)	9.8 (6) mol%	18.4 (11) wt%	a=6.158(3) b=9.201(8) c=3.141(3)
	Densitas : 2.637 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.07			Densitas : 3.103 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 7.69			Densitas : 3.219 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 8.66			Densitas : 2.734 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 7.40		
	Parameter Global : Rp=13.12; Rwp=16.88; Rexp=9.91; GOF=2.094											
SMB4j	48.4 (20) mol%	17.7 (21) wt%	a=4.927(1) b=4.927(1) c=5.412(2)	17.3 (12) mol%	10.6 (3) wt%	a=9.255(4) b=8.754(4) c=5.318(3)	10.4 (3) mol%	51.0 (4) wt%	a=9.606(2) b=8.811(1) c=5.174(1)	23.9 (16) mol%	20.7 (17) wt%	a=6.175(4) b=9.205(8) c=3.146(2)
	Densitas : 2.630 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 3.01			Densitas : 3.094 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.49			Densitas : 3.208 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 5.41			Densitas : 2.722 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.66		
	Parameter Global : Rp=13.74; Rwp=17.71; Rexp=13.92; GOF=1.619											
SMB6j	39.1 (17) mol%	19.5 (9) wt%	a=4.927(2) b=4.927(2) c=5.407(3)	37.7 (18) mol%	31.4 (15) wt%	a=9.242(3) b=8.749(3) c=5.313(2)	3.9 (3) mol%	26.3 (17) wt%	a=9.609(4) b=8.804(4) c=5.175(2)	19.3 (14) mol%	22.8 (17) wt%	a=6.178(5) b=9.208(13) c=3.145(3)
	Densitas : 2.632 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 9.76			Densitas : 3.103 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 10.29			Densitas : 3.209 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 12.44			Densitas : 2.721 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 12.88		
	Parameter Global : Rp=24.42; Rwp=31.81; Rexp=25.23; GOF=1.589											

### C. Komposit Keramik SMB4j terhadap Perlakuan Siklus Termal

Siklus ke-	FASA											
	Quartz			Protoenstatite			Clinoenstatite			Suanite		
	Prosentase		Parameter Kisi	Prosentase		Parameter Kisi	Prosentase		Parameter Kisi	Prosentase		Parameter Kisi
0	48.4	17.7	a=4.927(1)	17.3	10.6	a=9.255(4)	10.4	51.0	a=9.606(2)	23.9	20.7	a=6.175(4)
	(20)	(21)	b=4.927(1)	(12)	(3)	b=8.754(4)	(3)	(4)	b=8.811(1)	(16)	(17)	b=9.205(8)
	mol%	wt%	c=5.412(2)	mol%	wt%	c=5.318(3)	mol%	wt%	c=5.174(1)	mol%	wt%	c=3.146(2)
	Densitas : 2.630 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 3.094 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 3.208 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 2.722 g/cm <sup>3</sup>		
	R-Bragg : 3.01			R-Bragg : 4.49			R-Bragg : 5.41			R-Bragg : 4.66		
Parameter Global : Rp=13.74; Rwp=17.71; Rexp=13.92; GOF=1.619												
3	51.5	17.9	a=4.924(1)	10.7	6.2	a=9.252(5)	11.7	54.5	a=9.598(2)	26.1	21.4	a=6.176(5)
	(21)	(7)	b=4.932(1)	(7)	(1)	b=8.734(5)	(4)	(14)	b=8.807(1)	(17)	(13)	b=9.089(8)
	mol%	wt%	c=5.411(2)	mol%	wt%	c=5.315(3)	mol%	wt%	c=5.172(1)	mol%	wt%	c=3.161(2)
	Densitas : 2.634 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 3.104 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 3.213 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 2.741 g/cm <sup>3</sup>		
	R-Bragg : 1.97			R-Bragg : 5.06			R-Bragg : 4.77			R-Bragg : 4.97		
Parameter Global : Rp=13.53; Rwp=17.53; Rexp=13.92; GOF=1.585												
6	50.7	18.2	a=4.925(1)	11.5	8.7	a=9.235(7)	11.1	53.1	a=9.599(4)	23.7	20.0	a=6.167(5)
	(24)	(7)	b=4.925(1)	(24)	(14)	b=8.747(6)	(4)	(16)	b=8.810(1)	(18)	(14)	b=9.216(10)
	mol%	wt%	c=5.412(2)	mol%	wt%	c=5.318(4)	mol%	wt%	c=5.172(1)	mol%	wt%	c=3.138(2)
	Densitas : 2.632 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 3.103 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 3.211 g/cm <sup>3</sup>			Densitas : 2.729 g/cm <sup>3</sup>		
	R-Bragg : 2.53			R-Bragg : 4.33			R-Bragg : 5.59			R-Bragg : 4.11		
Parameter Global : Rp=13.91; Rwp=18.06; Rexp=13.94; GOF=1.677												



9	48.1 (23) mol%	15.9 (7) wt%	a=4.926(1)	10.8 (22) mol%	6.0 (12) wt%	a=9.239(7)	12.7 (5) mol%	56.1 (16) wt%	a=9.598(1)	28.3 (19) mol%	22.0 (14) wt%	a=6.169(5)
			b=4.926(1)			b=8.755(6)			b=8.811(1)			b=9.203(9)
			c=5.413(2)			c=5.304(5)			c=5.173(1)			c=3.139(2)
	Densitas : 2.630 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 2.65			Densitas : 3.107 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.91			Densitas : 3.210 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 5.36			Densitas : 2.731 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.05		
Parameter Global : Rp=13.94; Rwp=17.87; Rexp=13.83; GOF=1.671												
12	50.6 (24) mol%	17.2 (7) wt%	a=4.926(1)	10.6 (27) mol%	6.0 (15) wt%	a=9.247(8)	12.2 (5) mol%	55.4 (20) wt%	a=9.598(1)	26.6 (18) mol%	21.4 (14) wt%	a=6.176(5)
			b=4.926(1)			b=8.748(8)			b=8.809(1)			b=9.200(9)
			c=5.411(2)			c=5.321(4)			c=5.172(1)			c=3.145(2)
	Densitas : 2.631 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 3.13			Densitas : 3.097 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.91			Densitas : 3.212 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 4.21			Densitas : 2.724 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg : 3.38		
Parameter Global : Rp=13.23; Rwp=17.63; Rexp=13.63; GOF=1.674												
15	49.5 (25) mol%	18.0 (7) wt%	a=4.924(1)	15.3 (33) mol%	9.3 (20) wt%	a=9.191(9)	10.6 (5) mol%	51.5 (17) wt%	a=9.597(2)	24.6 (16) mol%	21.1 (13) wt%	a=6.171(4)
			b=4.924(1)			b=8.768(6)			b=8.809(1)			b=9.194(8)
			c=5.413(2)			c=5.330(5)			c=5.171(1)			c=3.140(2)
	Densitas : 2.632 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg :			Densitas : 3.104 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg :			Densitas : 3.213 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg :			Densitas : 2.732 g/cm <sup>3</sup> R-Bragg :		
Parameter Global : Rp=13.95; Rwp=17.95; Rexp=14.05; GOF=1.634												

## LAMPIRAN D

### Analisis Penghitungan KET dengan Pendekatan *Rule of Mixture*

#### 1. Komposit SMB

Sampel	Densitas fasa (luaran <i>Rietica</i> )				Prosentase berat fasa				%vol				KET komposit (terhitung)
	Quartz	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanite	Quartz	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanite	Quartz	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanite	
SMB1j	2.637	3.104	3.219	2.734	61.6	16.7	3.4	18.4	63.96	14.73	2.88	18.43	9.87
SMB4j	2.630	3.094	3.208	2.722	17.7	10.6	51.0	20.7	20.00	10.18	47.23	22.59	10.03
SMB6j	2.632	3.103	3.209	2.721	19.5	31.4	26.3	22.8	27.91	38.13	30.81	3.15	9.45

#### 2. Komposit SMB4j terhadap Perlakuan Siklus Termal

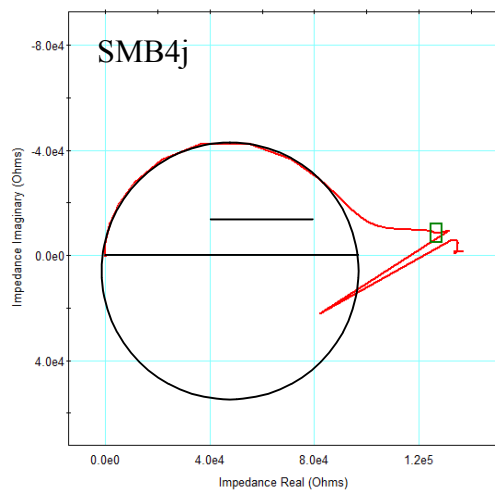
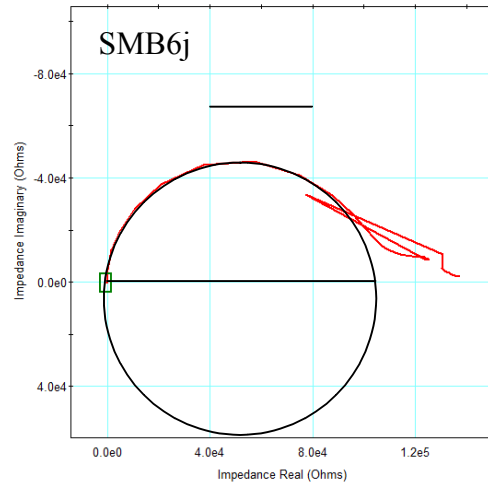
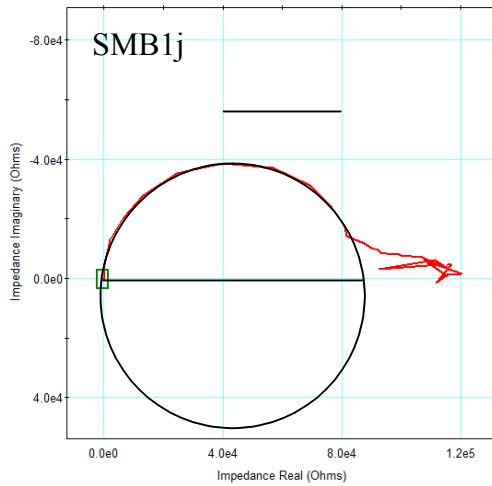
Siklus ke-	Densitas fasa (luaran <i>Rietica</i> )				Prosentase berat fasa				%vol				KET komposit (terhitung)
	Quartz	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanite	Quartz	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanite	Quartz	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanite	
0	2.630	3.094	3.208	2.722	17.7	10.6	51.0	20.7	20.00	10.18	47.23	22.59	10.03
3	2.634	3.104	3.213	2.741	17.9	6.2	54.5	21.4	20.25	5.95	50.54	23.26	10.08
6	2.632	3.103	3.211	2.729	18.2	8.7	53.1	20.0	20.59	8.35	49.24	21.82	10.12
9	2.630	3.107	3.210	2.731	15.9	6.0	56.1	22.0	18.04	5.76	52.15	24.04	10.05
12	2.631	3.097	3.212	2.724	17.2	6.0	55.4	21.4	19.47	5.77	51.37	23.40	10.08
15	2.632	3.104	3.213	2.732	18.0	9.3	51.5	21.1	20.36	8.92	47.72	22.99	10.03



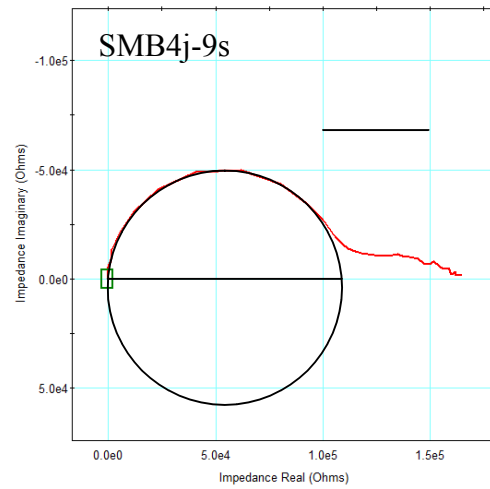
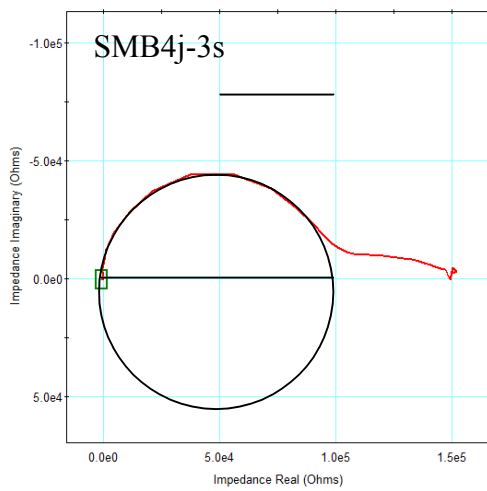
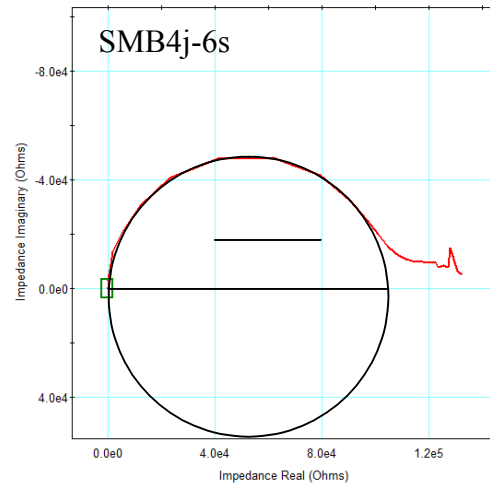
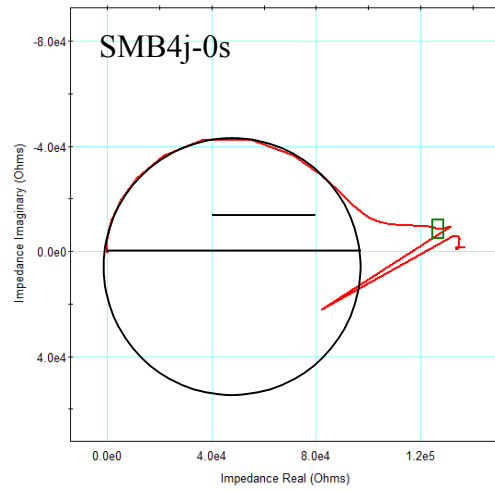
## LAMPIRAN E

### Analisis Penghitungan Resistivitas Listrik

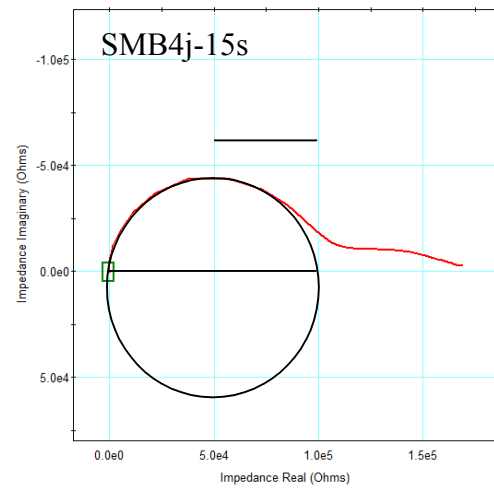
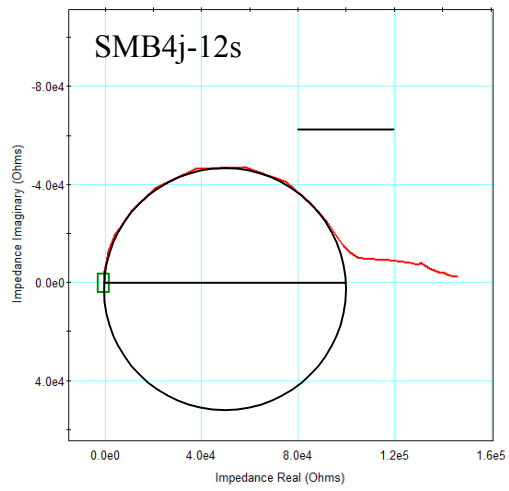
#### 1. Komposit SMB



## 2. Komposit SMB4j terhadap Perlakuan Siklus Termal



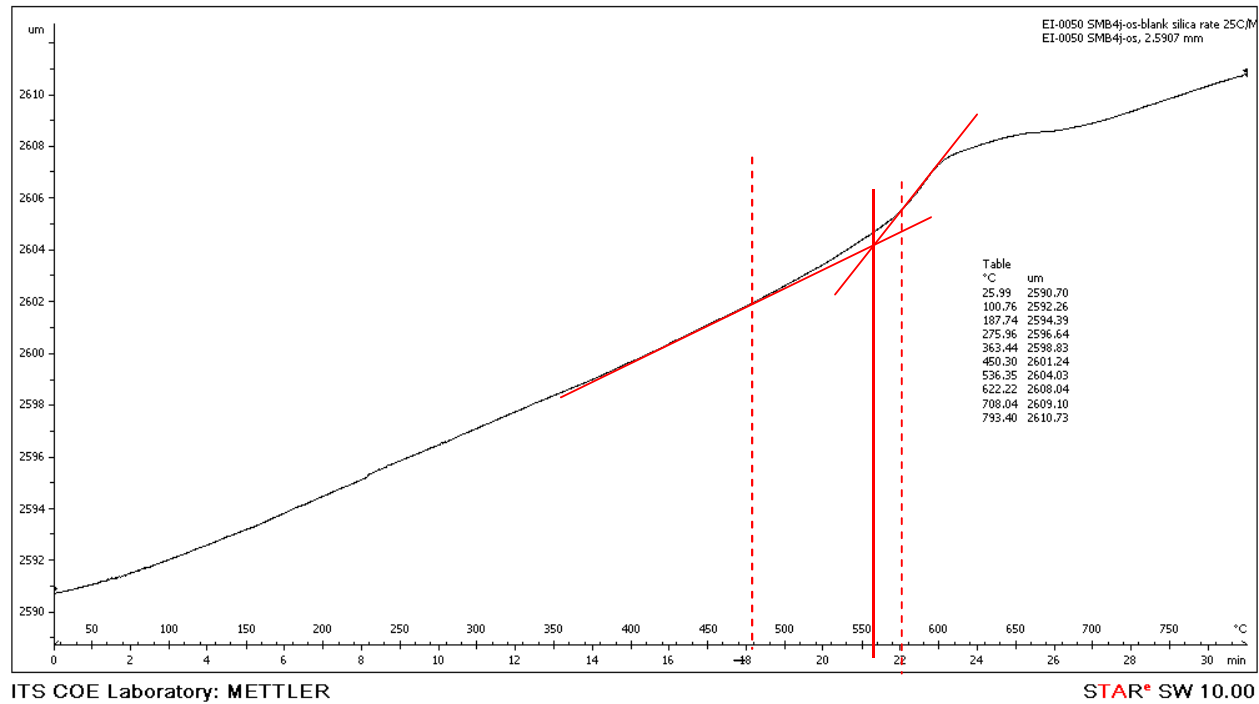




## LAMPIRAN F

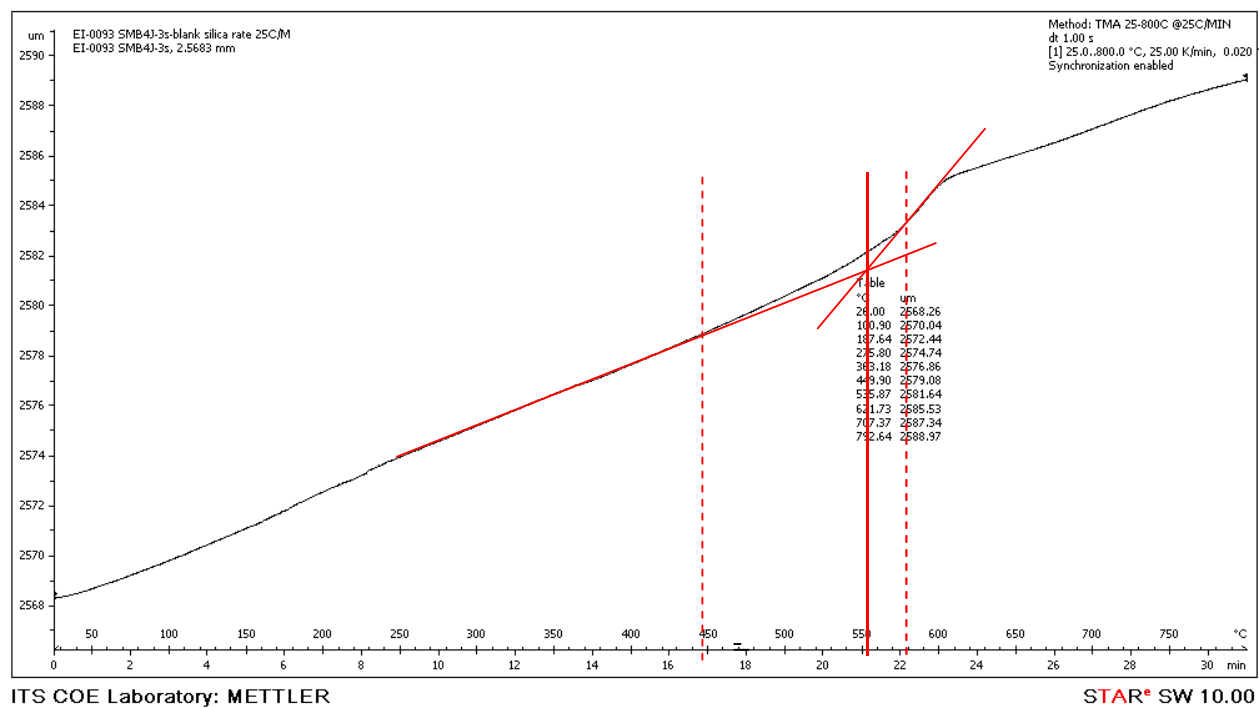
### Analisis *Transition Glass Temperature* ( $T_g$ )

SMB4j-0s

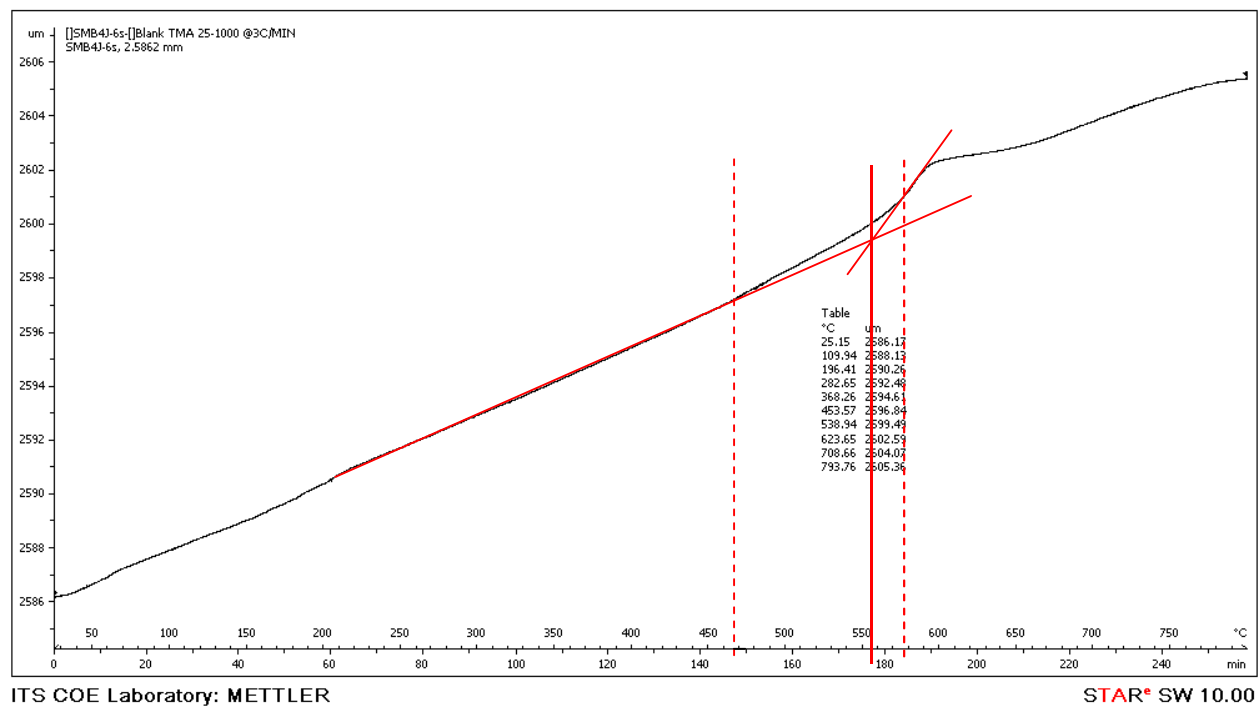




## SMB4j-3s

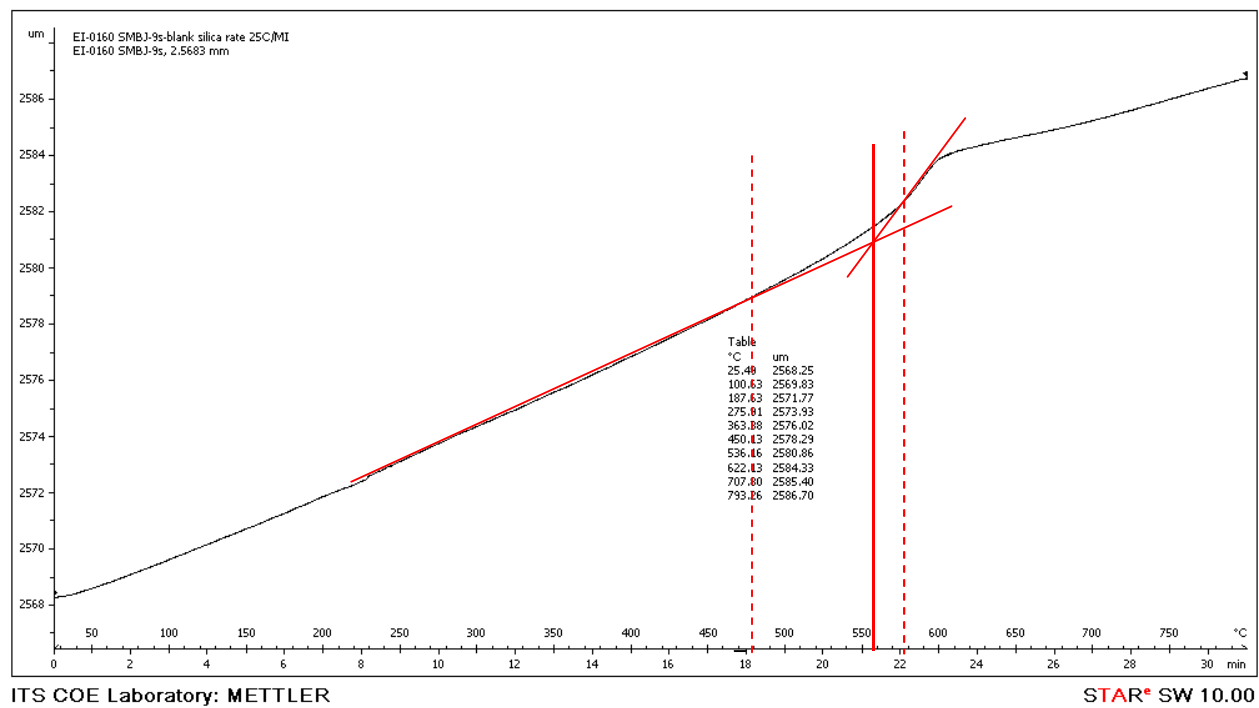


## SMB4j-6s

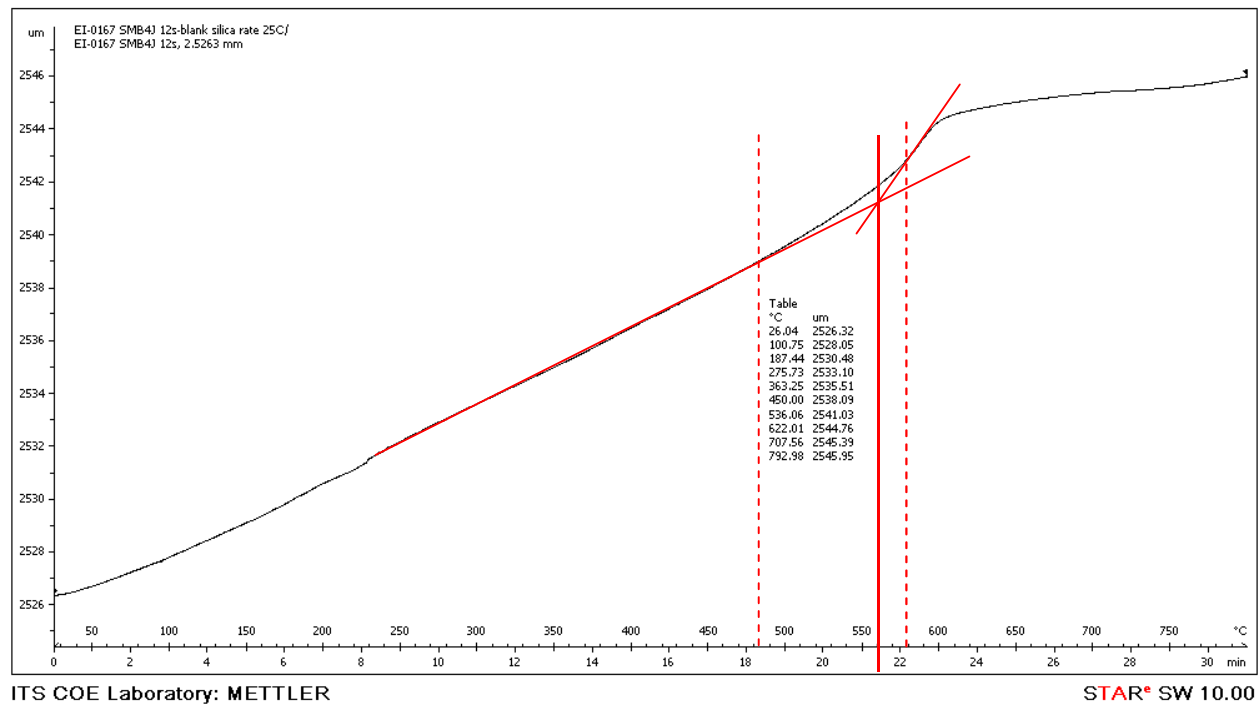




## SMB4j-9s

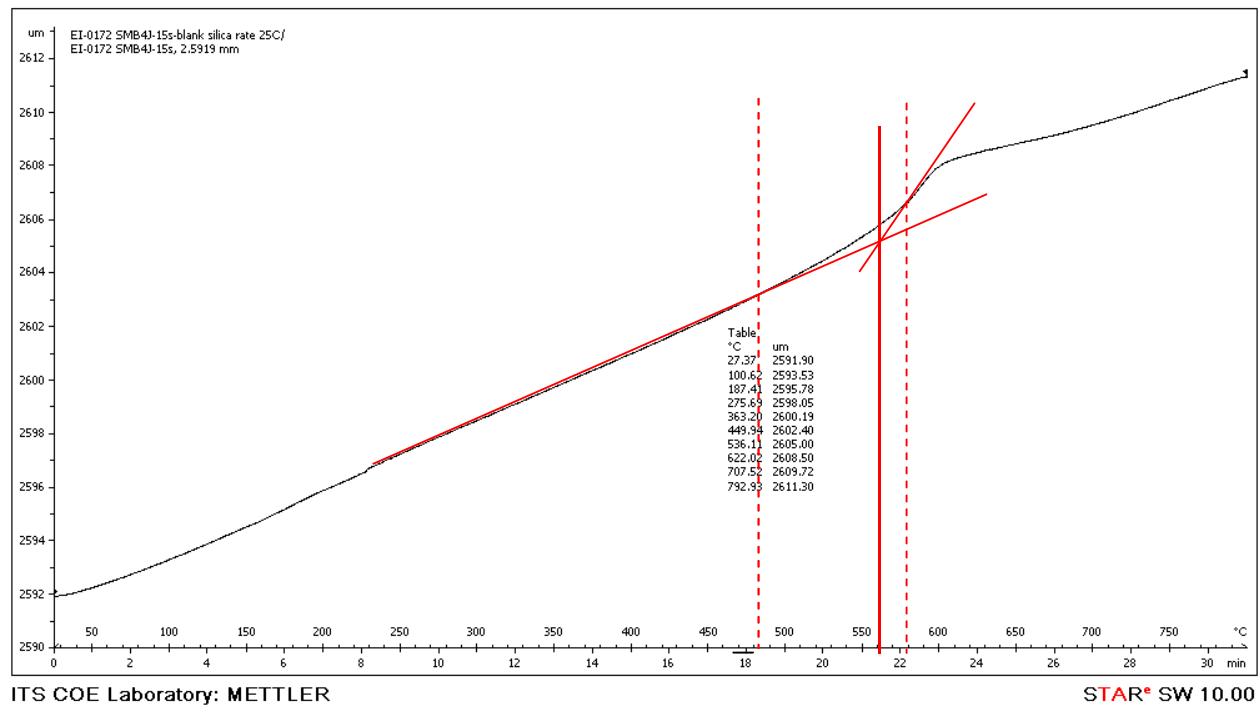


## SMB4j-12s





## SMB4j-15s



Temperatur transisi glas ( $T_g$ ) komposit ditentukan dari data pengujian TMA dengan cara menentukan titik bengkok pada perubahan kemiringan garis dasar grafik. Berdasarkan gambar di atas dapat diperoleh nilai  $T_g$  komposit SMB4j sebagai berikut

**Tabel 4.11** Temperatur Transisi Glas Komposit SMB4j pada Beberapa Siklus Termal

Sampel	$T_g$
SMB4j-0s	565 °C
SMB4j-3s	559 °C
SMB4j-6s	566 °C
SMB4j-9s	566 °C
SMB4j-12s	570 °C
SMB4j-15s	577 °C



**LAMPIRAN G**  
**Rekap Karakteristik Komposit SMB**

Sampel	Komposisi Fasa (wt%)				Resistivitas Listrik ( $\times 10^5 \Omega \text{ cm}$ )	Kekerasan (GPa)	Porositas (%)	KET Terhitung ( $\times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ )
	Kuarsa	Proto- enstatit	Klino- enstatit	Suanit				
SMB1j	61,6(12)	16,7(8)	3,4(9)	18,4(11)	2,2	2,3	1,89(1)	9,87
SMB4j	17,7(7)	10,6(3)	51,0(4)	20,7(17)	2,5	2,8	0,62(1)	10,03
SMB6j	19,5(9)	31,4(15)	26,3(17)	22,8(17)	2,6	5,3	0,53(1)	9,45

## LAMPIRAN H

### Rekap Karakteristik Komposit SMB4j terhadap Perlakuan Siklus Termal

Siklus ke-	Komposisi Fasa (wt%)				$T_g$ (°C)	KET ( $\times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )		Resistivitas Listrik ( $\times 10^5 \text{ } \Omega \text{ cm}$ )	Kekerasan (GPa)	Porositas (%)
	Kuarsa	Proto-enstatite	Klino-enstatite	Suanit		Terhitung	Terukur			
0	17,7 (7)	10,6 (3)	51,0 (4)	20,7 (17)	565	10,03	10,24	2,5	2,8	0,62 (1)
3	17,9 (7)	6,2 (1)	54,5 (14)	21,4 (13)	559	10,08	10,23	2,6	2,7	0,61 (1)
6	18,2 (7)	8,7 (14)	53,1 (10)	20,0 (14)	566	10,12	10,25	2,7	2,8	0,60 (1)
9	15,9 (7)	6,0 (12)	56,1 (16)	22,0 (14)	566	10,05	10,26	2,8	2,7	0,61 (1)
12	17,2 (7)	6,0 (15)	55,4 (20)	21,4 (4)	570	10,08	10,20	2,5	2,7	0,63 (1)
15	18,0 (7)	9,3 (20)	51,5 (17)	21,1 (13)	577	10,03	10,21	2,6	2,7	0,61 (1)



**LAMPIRAN I**  
**Deviasi Kestabilan Karakteristik Komposit SMB4j Terhadap**  
**Perlakuan Siklus Termal**

Sifat	Rentang	Deviasi
Komposisi fasa		
• Kuarsa	(15,9-18,2) wt%	1,98 %
• Protoenstatit	(6,0-10,6) wt%	10,45 %
• Klinoenstatit	(51,0-56,1) wt%	1,59 %
• Suanit	(20,0-22,0) wt%	1,33 %
Porositas	(0,60-0,63) %	0,69 %
Kekerasan	(2,7-2,8) Gpa	0,77 %
KET (terukur)	$(10,20-10,26) \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$	0,09 %
Resistivitas listrik	$(2,5-2,8) \times 10^5 \text{ } \Omega \text{ cm}$	1,86 %
T <sub>g</sub>	(559-577) °C	0,43 %

## Use of Natural Silica Sand as A Component for Prospective Fuel Cell Sealing Materials

Musyarofah<sup>1</sup>, Upik Nurbaiti<sup>1</sup>, Egidius Dewa<sup>1</sup>, Triwikantoro<sup>1</sup>, Mashuri<sup>1</sup>, Sukma Firdaus<sup>2</sup>, and Suminar Pratapa<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Department of Physics, Faculty of Mathematics and Natural Sciences  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Jalan Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia  
\*Email: suminar\_pratapa@physics.its.ac.id

<sup>2</sup>Department of Mechanical Engineering, Polytechnic Tanah Laut  
Pelaihari, South Kalimantan, Indonesia

**Keywords:** Natural Silica Sand,  $\text{SiO}_2+\text{MgO}+\text{B}_2\text{O}_3$  system, Fuel Cell Seal.

**Abstract.** A study to enhance the value of natural silica sand from Tanah Laut, South Kalimantan, Indonesia has been initiated. A number of local sands were selected as the candidates for the study. The selected sand contained more than 90% quartz was further processed to obtain a high purity initial powder using magnetic separation and immersion with HCl. The sealing materials were prepared by mixing the natural-sand-based silica ( $\text{SiO}_2$ ) powder with magnesia ( $\text{MgO}$ ) and boria ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ) with composition of 70:10:20 by weight followed by uniaxial pressing and finally sintering at  $1150^\circ\text{C}$  for 1h and 4 h to produce ceramic composites. XRD measurement revealed that the ceramic contained quartz, protoenstatite, and clinoenstatite. The 1h and 4h ceramics exhibited 1.89% and 0.43% apparent porosity,  $7.00 \times 10^6$  and  $6.63 \times 10^6$   $\Omega\text{cm}$  electrical resistivity, 3.60 and 2.29 GPa Vickers microhardness, and  $11.20 \times 10^{-6}$  and  $11.55 \times 10^{-6}$   $\text{ppm}/^\circ\text{C}$  thermal expansion coefficient respectively. The 4h sample is more appropriate for sealing function in fuel cell than the 1h sample.

### Introduction

Development of sealing materials for fuel cell is acquiring more attention recently, particularly based on oxide systems. A seal material plays important role in fuel cell systems because it seals the cells and prevent gas leakage [1]. A good sealing material for such systems has to meet several requirements, e.g. value of thermal expansion coefficient (TEC) is  $9.5\text{-}12.0 \times 10^{-6}$   $\text{ppm}/^\circ\text{C}$ , electrical resistivity  $\geq 10^4$   $\Omega\text{cm}$ , withstand pressure up to 14-35 kPa, and leakage  $< 1\%$  [2].

A glass-ceramic seal is the most preferred material today because it has superior sealing performances compared to other types [1-3]. Hidayat [4] has developed one of seal materials based on  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$  system with predicted TEC values range of 9.5-12  $\text{ppm}/^\circ\text{C}$ , but relatively high porosity, i.e. 30-40 %, very much larger than that of the required criteria. Meanwhile, addition of  $\text{B}_2\text{O}_3$  in some oxide ceramic systems can promote pore elimination due to its viscosity when liquid phase sintering process occurred [5].

This work is focused on the synthesis and characterization of sealing  $\text{SiO}_2\text{-MgO}$  system based on silica natural sand with  $\text{B}_2\text{O}_3$  as the additive as well as sintering agent. The use of the natural sand aims to enhance the value of such sand from Tanah Laut as a material to achieve the required properties for sealing.



## Experimental

The raw materials were natural sands taken from several locations in Tanah Laut District, i.e. Sungai Asem-asem (SA), Sungai Riam (SR), Tambang Ulang (TU), and Tanah Laut (TL). Distribution of elemental concentration for the samples were analyzed using energy dispersive x-ray (EDX) spectrometer. XRD was applied to observe phase compositions, using a Philips X'Pert Powder diffractometer with  $\text{CuK}\alpha$  radiation.

The sand with highest Si or  $\text{SiO}_2$  content according to EDS and XRD was further processed to obtain silica with highest purity. Magnetic compounds in the sand were removed by a magnetic separation procedure using a permanent magnet. After that, the sand was immersed using HCl 2M for 12 hours to increase its purity and then washed using aquadest until its pH was netral. Again, EDX and XRD were applied for its elemental content and phase compositions after purification.

The sealing material was prepared by mixing the 'purified' natural-sand-based silica ( $\text{SiO}_2$ ) powder with magnesia ( $\text{MgO}$ ) and boria ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ) with composition of 70:10:20 by weight followed by uniaxial pressing in a stainless steel die and finally sintering at  $1150^\circ\text{C}$  with 1 hour and 4 hours to produce ceramic composites. XRD data for the surface of the samples were collected, followed by phase analyses. The apparent porosity and bulk density of sintered composites were measured using the Archimedes method. Their electrical resistivity was tested by four point probe method. Vickers microhardness tests were performed on the composites to examine the mechanical strength, while the associated CTE were calculated based on Rule of Mixture (*RoM*) [4].

## Results and Discussion

Table 1 and Figure 1(a) show that natural sands in several locations in Tanah Laut contain various elements and phase compositions. As can be seen, TL sand has the highest content of Si and dominant phase of  $\text{SiO}_2$  quartz – both indicates it contains higher  $\text{SiO}_2$  content than the other sands. Subsequently TL sand was chosen for extraction to obtain silica with higher purity. The elemental content and phase of sample TL sand which been washed, magnetically separated, and submerged with HCl, was tested by EDX and the result shows that sample having 100% of Si element. Figure 1 shows the XRD patterns of the purified, TL sand sample. Further qualitative analysis indicates the existence of single phase of quartz.

Figure 2 shows the XRD patterns for the surface of the composites sintered for 1 hour and 4 hours. Qualitative analysis reveals that the ceramics contain quartz (00-046-1045), protoenstatite (00-011-0273), and clinoenstatite (00-035-0610). Furthermore, quantitative phase analyses based on the Rietveld method using *Rietica* [6] results in the relative weight fraction of these phases in SMB1h, which are 63.5%, 24.3%, and 12.2%, respectively, while in SMB4h are 34.0%, 34.2%, and 31.8%, respectively. Quartz quantity decreases with increasing holding time because it immediately react with  $\text{MgO}$  become protoenstatite and clinoenstatite.

Table 1 shows data of physical, electrical and mechanical properties of the composites. The apparent porosity decreases slightly with increasing holding time. Decreasing in porosity which occurred is caused by the role of the sintering agent  $\text{B}_2\text{O}_3$  on the sintering process [5]. Increasing the holding time allows 20wt% of  $\text{B}_2\text{O}_3$  to melt and cover almost all of the pores in the silica-magnesia composites. By the Archimedes method, it can be shown that the composites exhibit very low porosity, i.e. 1.89% and 0.43% for the composites sintered for 1 hour and 4 hours respectively.

CTE of the composites is closely associated with the formation of the phases. Calculation based on *RoM* [4] shows that the CTE values of the composites are 11.20 ppm/ $^\circ\text{C}$  for the composite sintered for 1 hour and 11.55 ppm/ $^\circ\text{C}$  for 4 hours one.



Table 1. EDX elemental content of the collected sands

Sand	Element Quantity (at.%)							
	Si	Al	Ca	Fe	Na	Mg	P	K
SA	68.92	10.13	2.44	6.75	4.42	6.52	0.81	0.00
SR	68.15	17.00	2.94	3.22	6.49	0.00	0.00	2.20
TU	26.52	1.24	1.55	4.23	0.00	64.91	1.55	0.00
TL	96.15	3.85	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
TL after purification	100	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

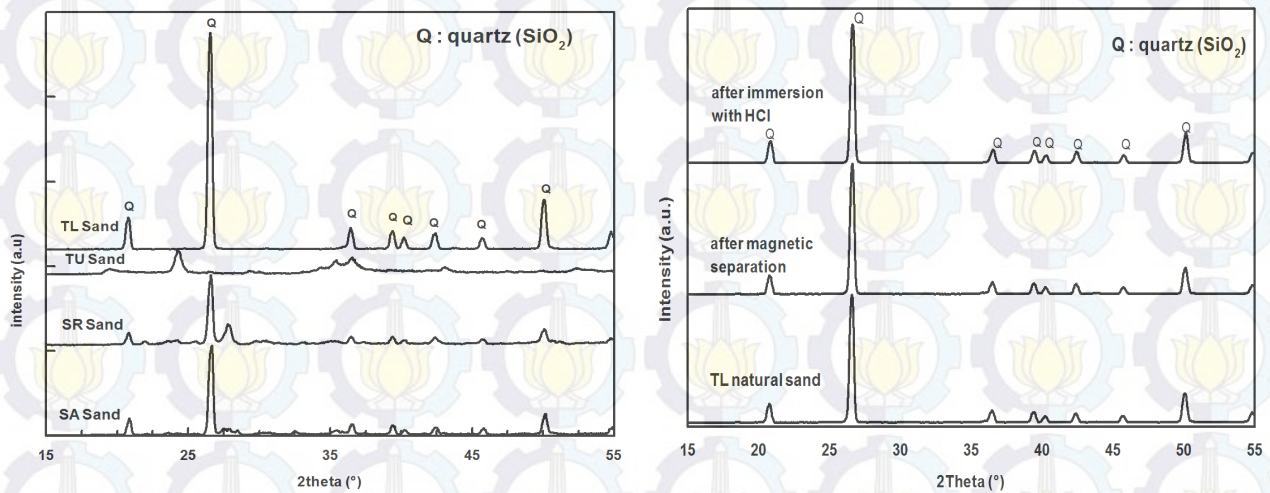
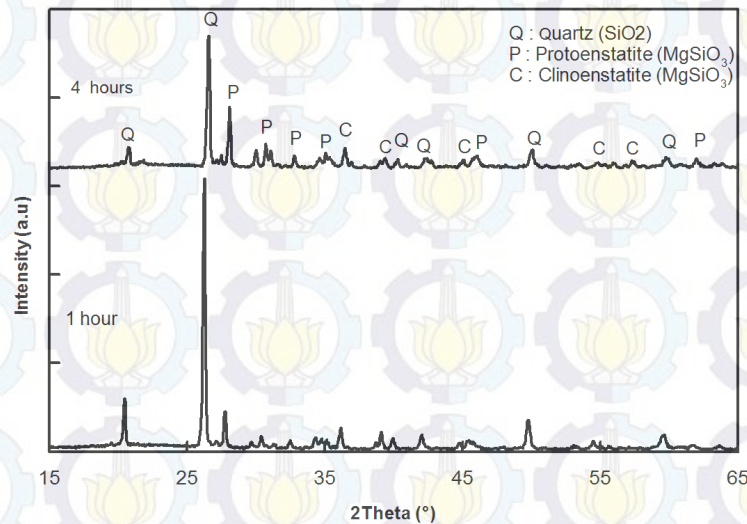
Figure 1. XRD patterns (CuK $\alpha$ ) of (a) several natural sands and (b) TL sand before and after purification.Figure 2. XRD patterns (CuK $\alpha$ ) for the surface of the SiO<sub>2</sub>-MgO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic composites with addition of 20 wt% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Table 2. Characteristics of SiO<sub>2</sub>-MgO composites with addition of 20% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Sample	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Porosity (%)	Hardness (GPa)	CTE (ppm/°C)	Resistivity (Ω cm)
1h	1.545(10)	1.891(9)	3.60	11.20	7.00×10 <sup>6</sup>
4h	1.627(10)	0.429(4)	2.29	11.55	6.63×10 <sup>6</sup>

Electrical resistivity of a seal glass depends on the composition of network formers, modifiers, and additive [1]. In our SiO<sub>2</sub>-MgO ceramic composite system, this is due to the ionic radius of Mg<sup>2+</sup> alkaline earth modifier ions. Decreasing electrical resistivity in composites is caused by increasing intermediate phases (protoenstatite and clinoenstatite) which contain higher alkaline earth ion [3].

German [7] explained that sintering at a certain temperature and holding time will decrease the porosity and increase the hardness and electrical resistivity values as it will form a strong bond between the particles in the sample. The silica content in the composite affects the microstructure, so that the composite ceramics become very hard. The ceramic sintered for 4 hours exhibit apparent porosity, electrical resistivity, hardness, and thermal expansion coefficient of which meet properties for seal in fuel cell as required [2]. The excellent properties reveal that the ceramic can be a good material for sealing in a fuel cell system.

### Summary

The density, porosity, thermal expansion, hardness and electrical resistivity of silica-magnesia-boria composites sintered at temperatures of 1150 °C for the 4h composite adequately qualifies the criteria as a fuel cell seal material with porosity values was < 1 %, CTE values range 9.5-12.0 ppm/°C, hardness value above the range 14-35 kPa and electrical resistivity ≥ 10<sup>4</sup> Ω cm as compared to the 1h one.

### Acknowledgements

The authors would like to thank Ministry of Education and Culture Republic of Indonesia and LPPM ITS to support finance through Program EPI-Unet no. 016445.2/IT2.7/PN.01.00/2014 given for SP.

### References

- [1] M. K. Mahapatra and K. Lu, "Seal Glass for Solid Oxide Fuel Cells," *Journal of Power Sources*, vol. 195, pp. 7129-7139, 2010.
- [2] M. K. Mahapatra and K. Lu, "Glass-based Seals for Solid Oxide Fuel and Electrolyzer Cells – A Review," *Materials Science and Engineering B*, vol 67, pp 65-85, 2010.
- [3] S. Ghosh, A. D. Sharma, A. K. Mukhopadhyay, P. Kundu, and R. N. Basu, "Effect of BaO Addition on Magnesium Lanthanum Alumino Borosilicate-Based Glass-Ceramic Sealant for Anode-Supported Solid Oxide Fuel Cell," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 35, pp. 272-283, 2010.
- [4] N. Hidayat, Triwikantoro, M. A. Baqiya, and S. Pratapa, "Thermal Expanssion Coefficient Prediction of Fuel Cell Seal Materials from Silica Sand," *AIP Conference Proceedings*, vol. 1555, pp. 99-101, 2012.
- [5] C. F. Yang and C. M. Cheng, "The Influence of B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> on The Sintering of MgO-CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> Composite Glass Powder," *Ceramics International*, vol. 25, pp. 383-387, 1999.
- [6] Hunter, B. A, 1998. *Newsletter of International Union of Crystallography*, Sydney, p. 21.
- [7] German, R.M. 1994. *Powder Metallurgy Science*, 2<sup>nd</sup> ed. Metal Powder Industries Federation. p. 273.



## BIOGRAFI PENULIS



Musyarofah, lahir di Pemalang pada tanggal 29 Januari 1991, merupakan anak pertama dari tiga bersaudara pasangan Mahmud dan Darsini. Penulis telah menempuh pendidikan formal di TK Al-Ikhlas, SDN 1 Plawangan, SMPN 2 Kragan, SMAN 1 Kragan, S1 Pendidikan Fisika Unnes angkatan 2009 dan S2 Fisika ITS angkatan 2013 dengan NRP 1113201006. Di jurusan Fisika ini, penulis mengambil bidang minat material. Selama menjadi mahasiswa S2 Fisika ITS, penulis mengikuti publikasi artikel ilmiah dalam seminar *7<sup>th</sup> International Conference on Physics and Its Applications (ICOPIA) & International Conference on Advance Materials Science and Technology (ICAMST)* yang diselenggarakan di Solo. Akhir kata apabila ada kritik dan saran, dapat dikirimkan ke [musyarofah.wongfisika@gmail.com](mailto:musyarofah.wongfisika@gmail.com).